

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

DOCTORAT PRÉSENTÉ À
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES
COMME EXIGENCE PARTIELLE
DU DOCTORAT EN INGÉNIERIE
OFFERT EN EXTENSION EN VERTU D'UN PROTOCOLE D'ENTENTE AVEC
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

PAR
Olivier Thierry SOSSO MAYI

MODELISATION DES FLAMMES ET DE LA FORMATION
DES POLLUANTS EN MICRO ET NANO COMBUSTION

NOVEMBRE 2014

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

DOCTORAT EN GÉNIE INDUSTRIEL (PH.D.)

Programme offert par l'Université du Québec à Chicoutimi (UQAC)

en extension avec

L'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR)

**MODELISATION DES FLAMMES ET DE LA
FORMATION DES POLLUANTS EN MICRO ET
NANO COMBUSTION**

PAR

Olivier Thierry SOSSO MAYI

James Tonyi Agbébavi
Prof, directeur de recherche

Prof au Département de Génie Chimique
Université du Québec à Trois-Rivières

Derdouri Adessalem
Dr, président du jury

Prof au Département de Génie Mécanique
École Polytechnique de Montréal

Marcel Brice Obounou
Dr, codirecteur de recherche

Enseignant au Département de Physique et Énergie
Université de Yaoundé I, Yaoundé Cameroun

Wamkeue René
Prof, évaluateur externe

Prof au Département des Sciences Appliquées
Université du Québec à Albitibi- Témiscamingue

Dubé, Yves
Prof, évaluateur interne

Prof au Département de Génie Mécanique
Université du Québec à Trois-Rivières

Koffi, Demagna
Prof, évaluateur interne

Prof au Département de Génie Mécanique
Université du Québec à Trois-Rivières

Thèse soutenue le 14 Novembre 2014

Résumé

L'objectif de cette thèse est de modéliser les polluants formés dans une micro flamme et de vérifier la possibilité de la formation d'une nano flamme. L'atteinte de cet objectif a induit un objectif préalable, qui consiste à la simulation d'une micro flamme. Simuler une micro flamme exige de faire le choix d'une cinétique chimique appropriée, ce qui constitue une contrainte importante à lever.

Les effets d'une cinétique chimique simplifiée à une seule équation globale sur une micro flamme ont été étudiés avec différents mécanismes de cinétique chimique, à savoir les modèles de Mantel, de Duterque et celui dit d'Arrhenius proposé par Fernandez-Tarrazo. Une étude numérique d'une micro flamme pré mélangée méthane/air dans des conditions pauvres (ratio équivalent $\phi = 0,9$) dans un micro réacteur tubulaire rectangulaire a été effectuée. Plus précisément, leur influence sur la structure de la flamme, la température du mélange réactionnel le long du déplacement axial du micro réacteur et les températures des parois ont été analysées. Les résultats montrent que le mécanisme de cinétique chimique à une équation globale affecte à la fois la forme de la flamme et la température de combustion dont la grandeur est globalement surestimée. Parmi les trois modèles simulés, le modèle de Mantel permet de produire une flamme stable ancrée à l'entrée du réacteur avec une forme convexe, tandis que le modèle de Duterque a donné une flamme allongée stable avec un retard à l'allumage considérable. Une zone morte est observée avec une accumulation de liquide à cette température et pression initiales à l'entrée du réacteur ce qui peut expliquer le taux de réaction élevé ainsi que la température de combustion obtenue. Le modèle dit d'Arrhenius a résulté en une flamme sous la forme

d'un point très chaud luminescent. Ce modèle a produit une flamme sujette à une extinction rapide et ne semble pas être approprié pour les simulations numériques de la micro combustion. En outre, l'utilisation d'une cinétique chimique à une équation globale semble déterminer la température initiale applicable à la fois à la zone d'écoulement de fluide et aux parois du micro réacteur, ce qui favorise l'ignition de la combustion du pré mélange.

Une question clé de recherche en combustion est la réduction des émissions nocives, cette question est posée ici dans le cas de la micro combustion. Une micro flamme pré mélangée méthane/air a été simulée avec une cinétique chimique simplifiée à quatre équations de Jones et Lindstedt. De plus, le mécanisme de cinétique chimique à trois équations permettant de décrire la formation du NO thermique a été intégré au code Comsol 4.2a décrivant le processus de production et de disparition des espèces chimiques majoritaires. Les simulations effectuées dans les conditions stœchiométriques et de mélange pauvre avec des ratios équivalents égaux à 0.9 et 0.7, montrent que le modèle de cinétique chimique de Jones et Lindstedt permet d'obtenir une flamme stable avec des températures de l'ordre de 2000K, comparables à celles obtenues avec une cinétique chimique détaillée rapportées dans la littérature. On note aussi que la richesse du mélange influence la position de la micro flamme. Elle se forme à l'entrée du micro réacteur pour $\phi=1$ et $\phi=0.9$, mais est déviée au centre du micro réacteur avec $\phi=0.7$. La production du dioxyde de carbone (CO_2) varie avec la richesse du mélange. Elle est maximale pour $\phi=1$ et de l'ordre de 250 ppm, inférieure à celle du seuil exigée pour un air respirable. Quant au monoxyde de carbone (CO), il ne se retrouve pas dans les produits de combustion du fait des températures élevées des produits de combustion dans les trois cas de figure. Le monoxyde d'azote (NO) se retrouve en quantité minime dans les produits de combustion et a une concentration inférieure à 1ppm. Cependant, on remarque que sa production est

maximale pour un mélange pauvre avec un ratio équivalent de 0.7, l'indice d'émission du NO (EINO) dans ce cas est constant par rapport aux températures régnant dans le micro réacteur. On peut donc s'inquiéter d'une production de NO plus importante pour un mélange pauvre avec $\phi < 0.7$.

L'optimisation des dimensions d'entrée des réactifs (gap) d'un micro réacteur rectangulaire a été faite en établissant un modèle mathématique de l'épaisseur de la zone de réaction en fonction de la hauteur du réacteur (canal ou gap). Ce modèle établi à partir d'une analogie électrique des échanges de chaleur dans un réacteur rectangulaire a permis d'établir une équation de degré quatre permettant d'obtenir les dimensions minimales et maximales pour lesquelles l'épaisseur de la flamme existe toujours. On retiendra qu'avec un écart (gap) de 100 μm , il est possible d'avoir une flamme d'épaisseur de 0,014 mm. Bien que cette épaisseur soit faible, ce résultat prouve qu'il est possible de produire une nano flamme. Cependant, par rapport aux simulations effectuées, la dimension minimale pour laquelle une flamme présentant des extinctions répétitives a été obtenue est de 400 μm .

Le travail effectué permettra l'utilisation d'autres modèles simplifiés de cinétique chimique à une équation globale et même à 4 équations globales pour les travaux de simulation en micro combustion. Il ouvre la voie à des études expérimentales permettant l'évaluation des polluants produits par des dispositifs microscopiques. En outre, il a été démontré que le plus petit dispositif de micro réacteur rectangulaire devrait avoir une dimension d'entrée des réactifs de l'ordre de 100 μm , il faudra le faire expérimentalement.

Abstract

The objective of this thesis was to model the pollutants generated within the micro flame and to investigate the possibility to obtain a nano flame. Therefore it implies to simulate a micro flame from which pollutants should be evaluated and to analyse the appropriate conditions for the production of a nano flame. The simulation of micro flame also requires to choose adequate chemical kinetic mechanisms, a key constraint in the combustion process.

The effects of a simplified one step overall chemical kinetic equation on a micro flame were investigated with different kinetics models, namely Mantel, Duterque and the so called Arrhenius models. A numerical study of a premixed methane/air flame in lean conditions ($\phi = 0.9$) within a rectangular tubular micro reactor was undertaken by solving the 2D governing equations. More precisely, their influence on the structure of the flame, the temperature of the fluid along the axial displacement of the reactor and the walls temperatures were analyzed. The results show that one step chemical kinetic mechanism affected both the shape of the flame and the combustion temperature whose magnitude is globally overestimated, corroborating the results in the existing literature. Among the three simulated models, the Mantel model allowed a stable flame anchored to the inlet reactor with a convex form, while the Duterque model gave a stable elongated flame with considerable ignition delay. A dead zone is observed with fluid accumulation at the entrance of the reactor which may explain the strong reaction rate and the very high combustion temperature obtained, despite the development of a flame in the form of a very hot illuminated spot lit all around. The so called Arrhenius model resulted in a rapid extinction of the flame and does not seem to take into account all the kinetic phenomena for appropriate numerical simulations of the micro combustion. Furthermore the one step overall chemical kinetic approach seems to determine the initial temperature applicable for both fluid flow area and the walls of the

micro reactor that favors the onset of premixed mixture combustion during micro combustion calculations.

Combustion is a process used in the production of MPG for portable energy. A key issue in combustion research is the reduction of harmful emissions. A premixed methane/air micro flame was simulated with a simplified chemical kinetics with four equations of Jones and Lindstedt. In addition, the chemical kinetic mechanism with three equations describing the formation of thermal NO was integrated into Comsol 4.2a code. These ~~all that~~ equations described the production process and disappearance of the major chemical species. Simulations in stoichiometric and lean conditions with equivalent ratio ϕ equal to 0.9 and 0.7 show that, the simulation with the Jones and Lindstedt model provides a stable flame with the temperatures of the order of that obtained with a detailed chemical kinetic mechanism as reported in the literature. The investigation has pointed out ~~note~~ that the richness of the mixture influences the position of the micro flame. The flame is formed at the entrance of the micro reactor when $\phi = 1$ and $\phi = 0.9$, but it is deflected to the center of the reactor with $\phi = 0.7$. The production of carbon dioxide (CO_2) varies with the richness of the mixture; it reaches its maximum with $\phi = 1$, around a concentration of 250 ppm. This value remains smaller than the required threshold for breathable air. Carbon monoxide (CO) is not found in the products of combustion due to the high temperatures at the outlet of the micro reactor, whatever the equivalent ratio studied. Nitric oxide (NO) appeared in small amounts in the products of combustion at a concentration of less than 1ppm. However its production is maximal for a lean mixture or at the equivalent ratio of 0.7. The NO Emission Index (E.I.NO) in this case is constant relative to temperatures in the micro reactor. It may therefore be worried for the NO production at a lean mixture with $\phi < 0.7$.

The optimisation of the tubular rectangular micro reactor gap (dimension of the entrance of mixture) was done by establishing a mathematical model of reaction zone thickness in comparison of the gap dimension. This model constructed from an electrical analogy of heat exchange inside a rectangular reactor has led to an equation of degree four, allowing to obtain the minimal and maximal dimensions from which the flame thickness continue to exist, in the both conditions advantaging or disadvantaging a chemical reaction. The results gave us 100 μm as a minimal dimension for a nano reactor with 0.014 mm flame thickness. Although this thickness is very thin, this result proves that the nano flame production could be explored. However the results obtained from the simulation gave a gap of 400 μm . This first guess of this discrepancy may due to the chemical kinetic mechanisms used in this cases, were the simplified models may not be appropriated. But physical experimental benches will confirm or infirm the different findings of this work.

Keywords: Simplified Chemical kinetic models, Flame, Micro- and Nano- reactors, Combustion, Numerical simulation, Pollutants evaluation, Optimisation.

Dédicaces

Le Seigneur Dieu m'a donné la force, la santé et le courage. Sans sa présence, nul doute que je n'y serais pas arrivé.

À mon papa Mayi Emmanuel et ma maman Mang Marie Madeleine.

À mon épouse Sara Ruth Pagbé, mes enfants, Alan Emmanuel Mayi Sosso, Eddy Olivier Sosso, Scott Widell Joseph Pagbé Sosso pour votre si longue patience, loin, très loin de moi.

À mes frères et sœurs, vous avez tout simplement été magnifiques, à vous mon éternelle reconnaissance.

Remerciements

Mes remerciements s'adressent à vous tous qui avez contribué à ma réussite.

Je remercie mon directeur de thèse, Professeur James Tonyi Agbébavi, pour sa disponibilité, son tact, le sens du travail et la rigueur qu'il a su m'inculquer, qualités essentielles pour un chercheur.

Je remercie mon co-directeur Docteur Marcel Brice Obounou pour sa collaboration avisée et combien enrichissante.

Je remercie les enseignants des départements de génie mécanique et de génie chimique qui ont aimablement collaboré avec moi, pour des projets comme pour les enseignements que j'ai dispensés. Je remercie aussi l'UQTR pour les facilités de travail mises à ma disposition. En outre je souligne la contribution du CACTAT via lequel mon inscription a pu être effectuée à travers le Professeur Koffi et le partenariat entre le CÉGEP de Trois-Rivières et l'IUT de Douala.

Mes remerciements s'adressent à Philippe Mpeck et sa famille pour son implication personnelle lors de mon inscription, de mon accueil et pour les cinq années passées au Québec. De même, je remercie fortement mon grand ami, René Tousignant, ainsi que toute sa famille pour l'aide apportée. René je ne t'oublierai jamais. À mon ami Jacques Rioux et à sa famille, merci pour ta gentillesse et pour toutes les heures de lecture passées à corriger mon travail. À mon amie Michèle Giguère, loin des yeux mais ô combien près du cœur :

merci de ta sollicitude! À Francine Corneau pour sa précieuse aide pour la mise en forme de ma thèse.

De même j'ai une pensée particulière pour mon père Professeur Onkan Evaglé Joseph, qui a prédit mon avenir d'universitaire et dont les encouragements ont toujours été précieux.

Mes remerciements s'adressent aussi à mes compagnons de route, Boubacar Doucouré, Makanga Paul, Hebia Cristophe, Laurent Bekalé, Modeste Abaté et Sami, pour leur présence. Elle a été d'autant plus appréciée que vous savez les moments difficiles que nous avons traversés. J'ai une pensée profonde pour Joseph Song-Manguelle qui m'a si bien reçu lors de mon arrivée au Canada, d'Etienne Mfoumou et de Jules Atangana pour leurs conseils sur certains aspects du Québec et leur considération.

Je remercie ma belle-sœur Gabrielle Nlend pour son écoute et sa sensibilité. Un grand merci à mon ami et frère Ndamé Max pour ta fidélité pendant mon absence, prenant soin des miens et restant même de très loin à mon écoute.

Je remercie mes sœurs (Erneste Madeleine, Thérèse Hervée, Angèle Valérie, Amélie-Emmanuelle): vous vous êtes sacrifiées pour moi, vous m'avez permis de m'affirmer comme homme, comme universitaire. Je vous dis merci du fond du cœur. A mes frères (Stève, Joseph Emmanuel, Gervais Armel), que mon travail soit pour vous une source d'inspiration qui montre le résultat de l'effort.

A mon épouse Sara Ruth qui a accepté de prendre soin de nos enfants, je lui dis merci pour sa patience. Enfin pour mes trois garçons, Alan, Eddy Scott je vous donne ici le relais, la preuve qu'aller au bout de ses efforts est nécessaire, voici votre héritage

Table des matières

Résumé.....	iii
Abstract.....	vi
Dédicaces	ix
Remerciements.....	x
Table des matières.....	xii
Liste des tableaux.....	xx
Liste des figures	xxi
Liste des symboles	xxvi
Chapitre 1 - Introduction générale	1
1.1. Définition du sujet	1
1.2. Intérêts du sujet	3
1.2.1. Intérêt énergétique	3
1.2.2. Intérêt scientifique	4
1.2.3. Intérêt technologique	4
1.2.4. Intérêt économique	6
1.2.5. Intérêt écologique	6
1.3. Proposition de recherche	6
1.3.1. Contexte de la thèse	6

1.3.2. Problématiques de la recherche en micro combustion.....	8
1.3.3. Problématique du sujet de notre thèse	11
1.3.4. Objectifs.....	12
1.3.5. Méthodologie	13
1.3.6. Originalité de la thèse	14
1.3.7. Impacts et retombées	15
1.4. Organisation de la thèse	15
Chapitre 2 - Revue de la littérature en micro combustion	18
2.1 Introduction	18
2.2 De la macro combustion à la micro combustion	18
2.2.1 Problèmes généraux de la micro combustion	21
2.3 Stabilité de la combustion dans les microstructures.....	24
2.4 Transfert de chaleur à travers les parois d'un microréacteur	30
2.4.1 La combustion homogène en phase gazeuse	33
2.4.2 La combustion catalytique (hétérogène).....	34
2.4.3 La micro combustion en milieux poreux	35
2.5 Caractérisation des micros flammes de combustion	35
2.5.1 Flammes pré mélangées.....	35
2.5.2 Flammes de diffusion.....	39
2.5.3 Le mélange combustible-comburant.....	40

2.6 Conclusion.....	41
Chapitre 3 - Contraintes de production d'énergie en micro combustion	43
3.1 Introduction	43
3.2 Modélisation expérimentale et numérique de la micro combustion.....	44
3.3 Modélisation d'une micro flamme pré mélangée.....	46
3.3.1 Caractérisation d'une micro flamme pré mélangée	46
3.3.2 Résultats des simulations des travaux.....	46
3.3.3 Influence de la conductivité des parois.....	50
3.3.4 Influence du débit du mélange réactif sur la stabilité de la micro flamme.....	51
3.3.5 Influence des dimensions de la paroi du microréacteur.....	53
3.3.6 Influence du type de combustible sur la stabilité de la micro flamme de combustion.....	55
3.4 Modélisation de la micro combustion non pré mélangée.....	59
3.4.1 Modèle de micro réacteur pour une flamme non pré-mélangée	59
3.4.2 Modèle analytique utilisé.....	60
3.5 Amélioration des micros réacteurs	61
3.5.1 Micros réacteurs à inversion de circulation de chaleur.....	62
3.5.2 Micros réacteurs à recirculation de chaleur à contre-courant	63

3.5.3	Micro réacteur catalytique	65
3.5.4	Micro réacteur à chauffage des parois	65
3.6	Conversion et utilisation de l'énergie produite dans les micros réacteurs.....	66
3.6.1	Utilisation de la micro chambre de combustion dans la conversion d'énergie.....	69
3.6.2	Micro production d'énergie électrique par le procédé thermo photovoltaïque	70
3.6.3	Micro production d'énergie électrique par le procédé thermo électrique.....	70
3.6.4	Micro production d'énergie de propulsion	71
3.6.5	Micros moteurs	73
3.7	Conclusion.....	73
Chapitre 4 - Analyse des flammes en micro combustion.....		75
4.1	Introduction	75
4.2	Analyse d'une flamme laminaire	76
4.3	La combustion	77
4.3.1	Équations régissant les écoulements réactifs laminares	78
4.3.2	Différents schémas de la cinétique chimique	82
4.3.3	Notion de stœchiométrie.....	88

4.4	Caractérisation des flammes laminaires	89
4.4.1	Caractérisation d'une flamme laminaire pré mélangée	90
4.4.2	Caractérisation d'une flamme de diffusion.....	95
4.5	Stabilisation des flammes.....	96
4.5.1	Vitesse de réaction, extinction.....	96
4.5.2	Stabilisation par auto inflammation.....	97
4.5.3	Stabilisation sur les lèvres du brûleur	98
4.5.4	Stabilisation par flamme triple.....	99
4.6	Étude comparative d'une micro flamme et d'une macro flamme	100
4.6.1	Modélisation des échanges de chaleur dans un micro réacteur	100
4.7	Conclusion.....	102
Chapitre 5 - Modélisation et simulation numérique d'une micro flamme de pré		
	mélange méthane/air	103
5.1	Introduction	103
5.2	Simulation numérique d'une flamme de pré mélange méthane/oxygène	
	à l'aide du logiciel Comsol 4.2a : Modèle du poster scientifique	
	présenté à la Conférence d'Amsterdam.....	104
5.2.1	Introduction.....	104
5.2.2	Modèle et simulation	105
5.2.3	Résultats et discussion	107

5.2.4 Conclusion partielle	109
5.3 Effets du choix d'un modèle de cinétique chimique simplifiée à une équation globale sur la stabilité d'une micro flamme de pré mélange méthane/air	110
5.3.1 Introduction.....	110
5.3.2 Méthode	113
5.3.3 Résultats et discussion	124
5.4 Conclusion.....	138
Chapitre 6 - Modélisation et simulation numérique de la production des polluants en micro combustion.....	
6.1 Introduction	140
6.2 La formation des polluants dans une chambre de combustion.....	141
6.2.1 Classement des polluants	142
6.2.2 Influence de la combustion sur la formation des polluants	144
6.2.3 Caractérisation des polluants	146
6.3 La pollution en micro et nano combustion	153
6.4 Évaluation numérique des polluants dans une micro flamme de pré mélange méthane/air.....	154
6.4.1 Méthodologie	159
6.4.2 Résultats et discussion	165

6.5 Conclusion.....	179
Chapitre 7 - Optimisation des dimensions d'un micro réacteur : de la micro	
combustion vers la nano combustion.....	180
7.1 Introduction	180
7.2 Réduction de dimension d'entrée des réactifs; effets sur la micro	
flamme.....	181
7.3 Méthodologie.....	185
7.3.1 Cinétique chimique	187
7.3.2 Modèle numérique	187
7.4 Résultats et discussion.....	197
7.4.1 Influence de l'épaisseur des parois sur la zone de réaction	200
7.4.2 Simulation de la nano flamme à l'aide de Comsol 4.2a	206
7.4.3 Nano matériaux, nano fluide et nano combustion	210
7.5 Conclusion.....	211
Chapitre 8 - Conclusion Générale.....	
8.1 Récapitulatif et synthèse de travaux	212
8.2 Perspectives et recommandations.....	217
8.3 Production scientifique.....	219
8.3.1 Articles de Journaux	219
8.3.2 Conférences Internationales.....	220

8.3.3 Distinction et Bourses	221
Bibliographie.....	222
Index	234
CURRICULUM VITAE	234
- Utilisation Usuelle : Word, Excel, Internet	241
Annexe A – Premier article tel que publié au journal Applied Thermal Engineering.....	242
Annexe B – Deuxième article tel que soumis au Journal Combustion and Flame	243
Annexe C – Analyse Technico économique de la mise sur pied d’un MPG	244

Liste des tableaux

Tableau 2.1	Comparaison des variables caractéristiques des macro et micro chambres de combustion[4].....	20
Tableau 2.2	Comparaison de la micro combustion homogène et hétérogène[4]	32
Tableau 3.1	Études expérimentales sur les micros réacteurs avec une géométrie simple[2].....	45
Tableau 3.2	Études numériques sur les micros réacteurs avec une géométrie simple[2].....	45
Tableau 5.1	Paramètres de taux de réaction donnant de bons résultats entre les limites de flammabilité expérimentales (and) et celles calculées. Unités des paramètres -cm-sec-mole-kcal-Kelvin[105]	117
Tableau 5.2	Une vue d'ensemble des études numériques faites à l'aide d'une cinétique chimique simplifiée ou détaillée avec des modèles géométriques simples.	118
Tableau 5.3	Paramètres de taux de réaction déjà utilisés pour la simulation d'une micro flamme de combustion	118
Tableau 7.1	Régimes d'écoulement associés à un ordre de grandeur du nombre de Knudsen [15]	194

Liste des figures

Figure 1.1	Comparaison de la performance énergétique entre combustibles et batteries [2],[3]	4
Figure 1.2	Domaines d'application de la micro combustion [4]	5
Figure 3.1	Modèle géométrique d'un micro réacteur tubulaire	46
Figure 3.2	Profil de température et du taux de réaction par rapport à l'axe du réacteur [58]	47
Figure 3.3	Contours de la température, du taux de réaction et de conversion des réactifs dans un micro réacteur de dimensions, gap 600 μ m, $L_w=200\ \mu$ m, épaisseur des parois, vitesse d'entrée des réactifs $v_{inlet}=0.5$ m/s, $k_w=3$ (W/m)/K, $h=10$ (W/m ²)/K [14].	48
Figure 3.4	Taux de réaction dans les conditions de stabilité, d'extinction et d'éruption de la flamme [14].	49
Figure 3.5	Variation de la température de paroi par rapport à la conductivité thermique, variation de l'écart de température fluide et paroi interne du micro réacteur par rapport au coefficient de convection [58]	51
Figure 3.6	Variation du taux de réaction chimique par rapport à la vitesse[22]	52
Figure 3.7	Zone de stabilité en micro combustion par rapport aux paramètres de conductivité thermique et de vitesse [22]	52
Figure 3.8	Variation du coefficient de transfert de chaleur à travers les parois par rapport à la fente d'entrée [22]	54
Figure 3.9	Variation de la vitesse d'entrée des réactifs par rapport à la grandeur de la fente d'entrée [22]	54
Figure 3.10	Quantité de chaleur perdue par rapport à chaque type de réactifs [14]	55
Figure 3.11	Température des parois par rapport à celle des réactifs [12]	56

Figure 3.12	Micro réacteur circulaire avec un diamètre d'entrée différent de celui de la chambre de combustion [18].....	57
Figure 3.13	Modèle de micro réacteur pour une combustion non pré mélangée [13]	59
Figure 3.14	Vue d'ensemble de la micro flamme non pré mélangée avec un débit global de 300 sccm (100 CH ₄ et 200 O ₂) [24].....	60
Figure 3.15	Modèle du micro réacteur à inversion de cycle [21]	62
Figure 3.16	Modèle du micro réacteur Swiss roll[9]	63
Figure 3.17	Modèle du micro réacteur HRR [23].....	64
Figure 3.18	Modèle de micro réacteur Catalytique SCR et HRR [41]	65
Figure 3.19	Modèle de micro réacteur annulaire [51]	66
Figure 3.20	Application de la micro combustion	67
Figure 3.21	Micro réacteur rectangulaire utilisé dans un système de conversion d'énergie thermoélectrique[4].....	69
Figure 3.22	Utilisation du micro réacteur Y dans un système de propulsion[4]	69
Figure 3.23	Modèle géométrique d'un MRTPV et son prototype[2]	70
Figure 3.24	Modèle géométrique d'un système T.E[62]	71
Figure 3.25	Modèle de micro propulseur[86]	72
Figure 3.26	Micro satellite[86]	72
Figure 3.27	Micro turbine à gaz[2]	72
Figure 3.28	Pièces mécaniques d'un micro moteur[2]	73
Figure 4.1	Schéma de réalisation d'une combustion [89]	77
Figure 4.2	Structure interne d'une flamme laminaire stationnaire de méthane-air.....	91
Figure 4.3	Profil d'une flamme laminaire pré-mélangée [4]	92
Figure 4.4	Structure de la zone de réaction d'une flamme de diffusion[90]	95
Figure 4.5	Géométrie de la flamme de Burke Schumann[90]	95

Figure 4.6	Domaine de combustion[90]	96
Figure 4.7	Stabilisation d'une flamme par auto inflammation[90]	98
Figure 4.8	Stabilisation d'une flamme par les lèvres du brûleur[90]	99
Figure 4.9	Stabilisation par flamme triple[90].....	100
Figure 4.10	Volume de contrôle d'un micro réacteur, modélisations des échanges de chaleur[15]	101
Figure 5.1	Évolution de la masse molaire des espèces en fonction du volume en m^3	105
Figure 5.2	Plage de température applicable pour l'ignition du mélange en m^3	106
Figure 5.3	Évolution du taux de réaction du méthane en fonction du volume en m^3	106
Figure 5.4	Micro réacteur tubulaire	107
Figure 5.5	Maillage non régulier du micro réacteur	107
Figure 5.6	Évolution de la température dans le micro réacteur	108
Figure 5.7	Distribution de la température le long du centre micro réacteur	109
Figure 5.8 (a)	Vue du micro réacteur et quelques conditions frontières ; (b) Maillage du domaine d'écoulement du fluide réactif.....	125
Figure 5.9	Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Mantel.	127
Figure 5.10	Profil du taux de réaction à l'aide du modèle cinétique de Mantel	128
Figure 5.11	Profil du taux de réaction à l'aide du modèle cinétique de Duterque	129
Figure 5.12	Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Duterque.....	130

Figure 5.13	Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Arrhenius	131
Figure 5.14	Profil de température de la flamme le long du réacteur (trait plein), profil de température des parois (traits pointillés) à l'aide du modèle de Mantel.	134
Figure 5.15	Profil de température de la flamme le long du réacteur (trait plein), profil de température des parois (traits pointillés) à l'aide du modèle de Duterque.....	135
Figure 5.16	Évolution de la température le long du centre du micro réacteur à l'aide du modèle d'Arrhenius.....	136
Figure 6.1	Décomposition du méthane par rapport à la richesse d'un mélange[121].....	144
Figure 6.2	Résultat de simulation donnant la propagation de chaleur dans le micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$	166
Figure 6.3 : (a)	Profil axial de température le long du micro réacteur.	168
Figure 6.4 :	Profil de production et de disparition des espèces majeurs le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$	172
Figure 6.5 :	Profil de production du dioxyde de carbone (CO ₂) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$	174
Figure 6.6 :	Profil de production du monoxyde de carbone (CO) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$	176
Figure 6.7 :	(a) Profil de production du monoxyde d'azote (NO) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent.	177
Figure 7.1	Vue d'ensemble du Modèle géométrique du micro réacteur en 3D	186
Figure 7.2	(a) Distribution d'énergie de combustion dans un micro réacteur et (b) analogie électrique[15]	189
Figure 7.3	Circuit équivalent permettant de calculer la résistance équivalente	191

Figure 7.4	(a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire pour une épaisseur des parois de 200 μm	199
Figure 7.5	(a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur de 100 μm	201
Figure 7.6	a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur de 300 μm	203
Figure 7.7	(a) Épaisseur minimale et (b) Épaisseur maximale, d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur variant entre [100 μm - 300 μm].	205
Figure 7.8	Flammes obtenues par simulation pour différentes grandeurs d'entrée des réactifs, (a) H=600 μm , (b) H=500 μm , (c) H=450 μm et (d) H=400 μm	208
Figure 7.9	Profil de température axial des flammes dans des micros réacteurs de dimensions d'entrée des réactifs, H=600 μm , H=500 μm , H=450 μm et H=400 μm	209

Liste des symboles

SYMBOLES	DESCRIPTION	UNITE
A	Facteur pré exponentiel du taux de reaction	sans unité
C	Concentration molaire	Mol/m ³
C _p	Chaleur massique à pression constant	J/kg-K
d	Diamètre	m
D	Coefficient de diffusion	m/s ²
E _a	Energie d'activation, equation chimique à une étape	J/Kmol
h	Enthalpie spécifique	J/kg
h	Coefficient de convection	J/kg
H _r	Chaleur de reaction	J/mol
k	Constante de vitesse	Variable
k _g	Coefficient de conduction thermique du gaz	W/m.K
k _w	Coefficient de conduction thermique de la paroi	W/m.K
L	Longueur du micro réacteur	m
L _f	Longueur de la flame	m
m	Masse	kg
\dot{m}	Débit massique	kg/s
N	Nombre d'espèces chimiques	sans unité
p	Pression	Pa ou en atm
q	Quantité d'énergie volumétrique	W/m ³
q _l	Taux d'énergie perdue par unite de surface du front de flame	W/m ²

q_w	Flux de chaleur perdue à travers la paroi	W/m^2
Q_{in}	Apport de chaleur par le mélange imbrûlé	W
Q	Quantité de chaleur générée par la réaction	W
R	Constante de gaz universelle = 8,314	$kJ/kmol.K$
R_{cond}	Résistance thermique par conduction	$M^2.K/W$
R_{conv}	Résistance thermique par convection	$M^2.K/W$
R_{rad}	Résistance thermique par rayonnement	$M^2.K/W$
RR	Taux de reaction	s^{-1}
S_L	Vitesse de flamme lumineuse	m/s
S_u	Vitesse de flamme lumineuse	m/s
S_u^u	Vitesse de flamme lumineuse adiabatique	m/s
s	Rapport de fraction massique	Sans unité
t_c	Temps chimique	s
t_R	Temps de residence des réactifs	s
T	Température	K
T_o	Température ambiante	K
T_f	Température de flamme	K
T_f^u	Température de flamme adiabatique	K
T_f	Température moyenne	K
T_g	Température du gaz	K
T_i	Température d'ignition	K
T_u	Température du mélange imbrûlé	K
T_w	Température des parois	K
u_o	Vitesse initiale	m/s
u	Vitesse axiale	m/s
V_{imb}	Vitesse des imbrûlés	m/s
Y_i	Fraction massique de l'espèce i	Sans unite
Z	Scalaire passif	Sans unite

LETTRES GRECQUES	SIGNIFICATION	UNITE
α	Coefficient de diffusivité thermique	m^2/s
δ	Epaisseur de la flamme	m
δ_r	Epaisseur de la zone de réaction	m
ϕ	Ration equivalent	Sans unité
γ	Puissance active statorique de reference	Sans unité
λ	Conductivité thermique	W/m.K
λ_m	Libre chemin moyen moléculaire	m
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
ν	Viscosité cinématique	m^2/s
σ	Constante de Stefan-Boltzmann, = $5,67.10^{-8}$	$W.m^2/K^4$
τ_{ij}	Tenseur de viscosité	$Pa.s^{-1}$
τ_c	Temps chimique	s
τ_R	Temps de residence	s
$\dot{\omega}$	Taux de réaction chimique ou vitesse de réaction	$Mol/m^3.s$
χ	Taux de dissipation scalaire	
INDICES	SIGNIFICATION	
c	Concentration	
f	Flamme	
g	Gaz	
i	Espèces	
u	Imbrûlés	
w	Paroi	

NOMBRE SANS DIMENSION	SIGNIFICATION
<i>Da</i>	Nombre de Damkholer
<i>Bi</i>	Nombre de Biot
<i>Kn</i>	Nombre de Knudsen
<i>Le</i>	Nombre de Lewis
<i>Nu</i>	Nombre de Nusselt
<i>Pr</i>	Nombre de Prandlt
<i>Re</i>	Nombre de Reynolds
<i>Sc</i>	Nombre de Schmitt
<i>St</i>	Nombre de Stanton
ABREVIATION	SIGNIFICATION
CFD	Computational Fluids Dynamics
MPG	Micro Power Generation
MNPG	Micro and Nano Power Generator
MEMS	Micro Electro Mechanical System
TE	Thermo Electrique
TPV	Thermo photovoltaïque
EINO	Indice d'émission de NO
Sccm	Centimètre cubique standard par minute
ppm	Partie par million

Chapitre 1 - Introduction générale

1.1. Définition du sujet

La miniaturisation des équipements électromécaniques et le besoin croissant des énergies portatives ont contribué au développement des équipements microscopiques de production d'énergie. Les domaines de sollicitation de cette technologie sont variés, la microélectronique, la biomécanique et la biologie moléculaire sont en grande partie bénéficiaires des progrès réalisés dans les techniques de la micro fabrication. Il y a encore quelques années, il était difficile de croire à la possibilité de produire une flamme dans des dispositifs de dimensions microscopiques, même si l'idée vit le jour en 1817 où Davy se proposa d'étudier les dimensions en deçà desquelles on ne pourrait avoir de flamme. En 2000 Jensen C., R. Masel, et *al.* ont démontré que la micro-combustion était possible, malheureusement leur brûleur n'a duré que 8 heures [1], en raison des températures très élevées des flammes. Leurs expériences les ont amenés à comprendre que l'on pouvait propager la flamme sur une vaste zone au lieu de créer un point chaud qui fait fondre les parois, ce qui a permis aux micros brûleurs suivants de durer bien plus longtemps. La possibilité d'exploiter efficacement l'énergie produite est l'objet des recherches actuelles, avec des résultats de plus en plus probants, R. Masel prétend même qu'on soit passé de l'« impossible » à la routine [2]. Le concept derrière cette nouvelle technologie est d'utiliser l'énergie spécifique très élevée d'hydrocarbures dans les micros dispositifs de combustion pour produire de l'énergie. En 2002 déjà, Fernandez-Pello et A. Carlos font la

remarque selon laquelle les hydrocarbures liquides ont une énergie spécifique de 45 MJ/kg, que les MEMS (Micro Electromechanical System) sont facilement transportables et parfaitement sécuritaires. Les meilleures batteries actuelles dont celles en Lithium ont une densité d'énergie de 1,2 MJ/kg. Ils conclurent qu'un MEMS, même avec une efficacité de 3% ferait concurrence avec la meilleure des batteries [3], d'où la nécessité d'aller vers cette technologie.

En 1999, dans un de ses articles intitulé « La modélisation et le calcul de la combustion turbulente : problèmes généraux et solutions partielles », Roland Borghi déclarait que la plupart des problèmes posés par la modélisation de la combustion (turbulente) sur le plan macroscopique sont presque tous résolus ou bien connus [4], ce qui n'est pas le cas pour la micro combustion. Plusieurs laboratoires ont mis au point des systèmes de micro combustion. Actuellement les armées des grandes puissances utilisent cette technologie dans le cadre du pilotage des drones. La recherche se développant à grands pas, en 2007 dans un article fort intéressant intitulé « Tendances et frontières des MEMS », Ge, W. X. et Cong, P. déclarent qu'en 2005 le marché mondial des MEMS s'évaluait à 5 millions de dollars US et prédisaient déjà sa montée en puissance pour les cinq prochaines années [5]. Seulement le domaine des MEMS est vaste et ses axes d'application variés. Dans celui de la micro-combustion, le seul pas à franchir est la commercialisation à grande échelle de cette technologie. Les structures de micro combustion varient selon les niveaux de puissances délivrées, mais aussi par rapport à l'échelle des grandeurs du dispositif. Par exemple les micros turbines sont en mesure de produire des puissances de l'ordre des kilowatts et sont classées dans la catégorie de micro structure en comparaison avec leurs homologues macroscopiques, car leur échelle de

grandeur est le millimètre [3]. Pour les structures à l'échelle de micromètre, utilisées pour les drones, les petits robots, les actionneurs ou les capteurs, les puissances délivrées sont de l'ordre de milliwatt.

Pour arriver au fonctionnement pratique de ces installations, à l'exploitation du potentiel énergétique de ces structures, plusieurs problèmes ont dû être résolus. Si le principe de base de la production de flamme a accompagné les chercheurs, les problèmes rencontrés sont totalement différents de ceux dans les systèmes macroscopiques. Le procédé de combustion en lui-même est différent, car plusieurs paramètres non pris en compte dans la combustion macroscopique le sont pour une micro combustion. De plus les composantes thermophysiques et thermoélectriques qui doivent accompagner ces dispositifs demandent une technologie particulière de fabrication [3], à quoi il faut ajouter le niveau de rendement délivré et le type de combustible à utiliser.

1.2. Intérêts du sujet

La micro production d'énergie peut s'appliquer dans plusieurs domaines, comme ceux de l'électronique, de l'électricité, de la biomécanique, de la biologie moléculaire ou de la santé [1]. Les intérêts que peut satisfaire cette nouvelle forme d'énergie sont de plusieurs ordres : énergétique, scientifique, technologique, économique et écologique.

1.2.1. Intérêt énergétique

Partant du principe que le potentiel d'énergie que contiennent les hydrocarbures est important, il apparaît que la micro production d'énergie offrirait des performances beaucoup plus grandes que la meilleure des batteries sur le marché. Même avec une efficacité de 3%, un microréacteur aurait une production d'énergie meilleure [1-3].

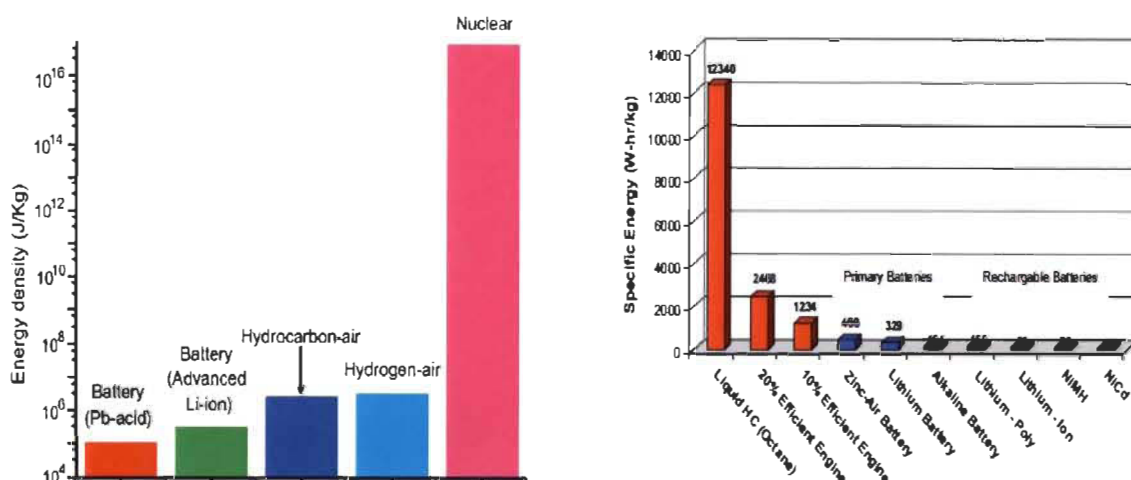


Figure 1.1 Comparaison de la performance énergétique entre combustibles et batteries [2],[3]

1.2.2. Intérêt scientifique

La production d'énergie dans un espace réduit fait appel à des concepts de couplage multi physiques : mécanique de fluide, transfert thermique et chimique, ce qui donne lieu à des difficultés nouvelles, étant donné que l'écoulement est laminaire, la flamme pourrait faire corps avec les parois du micro réacteur. Il y a encore une dizaine d'années, il était quasi improbable de penser produire une flamme dans un espace inférieur à 1 mm, mais l'évolution de la technologie, les performances des logiciels de conception et surtout les perspectives qu'offre cette possibilité ont permis d'arriver à la conception de prototypes fiables et performants.

1.2.3. Intérêt technologique

Avec les perspectives de développement des micros réacteurs, plusieurs concepts nouveaux ont vu le jour. Citons ceux de MEMS (Micro Electro Mechanical System), de

MPG (Micro Power Generator) et de NEM (Nano Energetic Material). Les domaines d'application sont vastes (**Figure 1.2**), de la micro production d'énergie électrique, des turbines, aux micros propulseurs avec les drones, en passant par l'alimentation des moteurs des voiturettes pour des personnes âgées, des moteurs de climatisation des voitures hybrides etc., la micro combustion est un vecteur énergétique qui peut s'intégrer aisément dans le monde industriel. En outre, on estime que les puissances développées, quoi qu'elles soient de l'ordre de dizaine de watts, peuvent être beaucoup plus grandes en faisant un couplage série-parallèle de plusieurs micros réacteurs [4], avec un avantage certain sur la production des polluants, mais aussi sur les risques bien plus maîtrisés en cas d'accident.

De façon générale, on peut représenter les diverses applications de la micro combustion par le schéma ci-dessous :

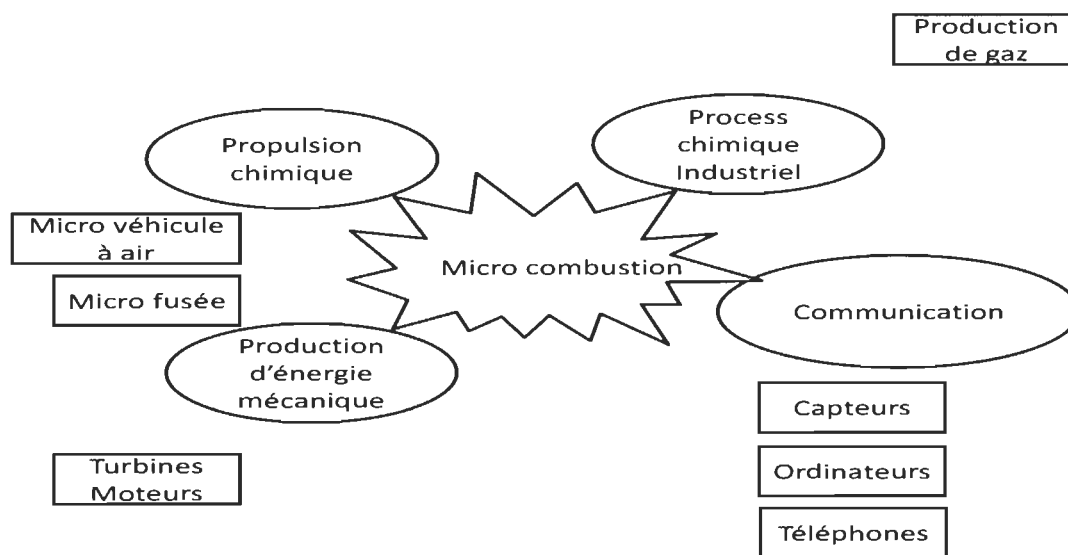


Figure 1.2 Domaines d'application de la micro combustion [4]

1.2.4. *Intérêt économique*

Les MEMS ont créé un pôle technologique important ainsi qu'un marché économique vaste, Ge W. X. et Cong, P. déclarent qu'en 2005, le marché mondial des MEMS s'évaluait à 5 millions de dollars [5]. Les enjeux sont importants et stratégiques, plusieurs laboratoires ont mis au point des systèmes de micro combustion; actuellement les grandes armées utilisent cette technologie et les pays développés font de cet axe de recherche une priorité.

1.2.5. *Intérêt écologique*

L'un des problèmes que posent les dispositifs macroscopiques de production d'énergie que sont les moteurs, les chaudières, les fours et les turbines à gaz est la production des polluants rejetés dans l'environnement au travers des produits de combustion. Les dispositifs de micro et nano combustion offriraient l'avantage d'une production moindre de CO_2 et de H_2O à cause de faibles quantités de combustible utilisable, ces produits de combustion seraient plus faibles en quantité comparativement à ce que produit un être humain [1]. Dans l'hypothèse de rejet de CO_2 pour cause de rendement des micros dispositifs faibles ou pour cause d'une mauvaise combustion, tout comme dans le cas de rejet des NO_x , la pollution générée par les MPG serait faible. De plus les MPG seraient beaucoup plus sécuritaires dans le cas extrême d'une explosion de leur système car l'impact d'un tel accident serait beaucoup plus circonscrit.

1.3. **Proposition de recherche**

1.3.1. *Contexte de la thèse*

Les batteries et les piles ont très longtemps été la principale source d'énergie portative pour des instruments de volume plus ou moins important. Seulement leur poids, leur

encombrement et surtout leur autonomie limitée ont toujours été source d'amélioration et dans une certaine mesure de changement. De nos jours, des batteries et des piles plus performantes sont sur le marché et offrent un rendement appréciable sans toute fois apporter une satisfaction complète. Cette insatisfaction a fait naître d'autres sources d'énergie portative, les piles à combustible, la production d'énergie par décomposition chimique (électrolyse) et depuis les années 2000, les MPG (Micro Power Generation).

Les MPG sont des dispositifs de dimensions extrêmement petites qui utilisent la combustion comme source de production d'énergie. Cette technologie permet d'exploiter le pouvoir énergétique des combustibles pour produire de l'énergie électrique, mécanique ou de propulsion et thermique. Le principe de production d'énergie et de sa conversion est presque le même que celui utilisé dans des dispositifs macroscopiques. La chambre de combustion est l'élément essentiel dans lequel le combustible est injecté et où la combustion prend corps, la récupération de l'énergie se faisant de plusieurs façons dont les turbines à gaz qui exploitent la vitesse des flammes et leur énergie pour faire tourner une turbine, qui elle-même est couplée à un transformateur (micro centrale électrique). Il en est de même lorsqu'on met plutôt en mouvement un piston (les micros moteurs). Dans d'autres dispositifs, on exploite la chaleur produite et transmise à travers les parois pour faire chauffer des plaques photovoltaïques et produire de l'électricité. Ils existent plusieurs autres applications pour les MPG, les microsattellites, les micros fusées, les drones, les micros robot entre autres. Si l'énergie produite par ces micros dispositifs est de l'ordre de quelques watts voir quelques centaines de watts, il est tout de même à noter qu'il est possible d'en produire bien plus en faisant des montages en série.

Les dimensions des dispositifs de production d'énergie ont fortement diminué au fil des temps, même les dispositifs macroscopiques n'ont plus les dimensions qu'ils avaient par le passé, gardant les mêmes performances et bien plus. La diminution des dimensions a permis de voir la naissance des dispositifs mesoscopiques, microscopiques et peut être dans le futur nanoscopiques. Si les dispositifs mesoscopiques sont abondants sur le marché, il n'en est pas de même de ceux microscopiques dont la recherche était encore à ses balbutiements il y'a une dizaine d'années. Cependant leur potentiel avéré et les avantages stratégiques ont conduit à une avancée significative dans la recherche et dans sa vulgarisation. Les armées de certains pays développés les utilisent et des prototypes sont développés dans les laboratoires de recherche avec succès conduisant à une utilisation quotidienne imminente.

1.3.2. *Problématiques de la recherche en micro combustion*

La production d'énergie dans les MPG est exclusivement liée à la qualité de la combustion générée dans la chambre de combustion. Produire une flamme de combustion dans des dispositifs aux dimensions très petites n'est pas une idée nouvelle. Elle date des années 1817 où Davy[6] se proposa d'étudier les dimensions critiques en deçà desquelles une flamme pouvait se propager. Il estima ces dimensions entre 1~2 mm, laissant penser à une impossibilité de voir se développer la micro combustion.

Depuis les années 2000, cette impossibilité a été levée avec la mise sur pied de plusieurs prototypes, les dimensions critiques sont passées de 750 μm à 400 μm et en 2011 V. Zamashchikov[7] a pu générer une flamme dans un dispositif de 150 μm de dimension d'entrée des réactifs.

La remise en cause de cette impossibilité a été réalisée par la résolution des multiples problèmes liés à la diminution des dimensions de la chambre de combustion. Ces problèmes, totalement différents de ceux rencontrés pour leurs homologues macroscopiques et même mesoscopiques sont :

- La génération d'une flamme auto-entretenu

Cette problématique générale englobe des problèmes plus spécifiques tel que le type de combustion, homogène ou hétérogène, le mélange des réactifs, la vitesse de l'écoulement, la stabilité de la flamme, la perte de chaleur à travers les parois, l'éruption de la flamme, la production des polluants, etc.

- Le dimensionnement du micro réacteur

Ici les problèmes spécifiques sont ceux de la forme géométrique du réacteur, les dimensions d'entrée des réactifs, le parcours des réactifs (longueur du dispositif), épaisseur des parois, combustion dans un milieu vide (air) ou en milieu poreux, etc.

- Le type des parois

L'un des problèmes qui a longtemps contribué à rendre difficile la micro combustion a été la qualité des parois utilisées, car la flamme faisant corps avec elles, leur résistance est éphémère; de plus se pose le problème de la combustion surfacique, du type de matériaux et des propriétés thermo physiques des parois à utiliser.

- La conversion de l'énergie

Récupérer l'énergie produite est essentielle, sans quoi il serait inutile de se lancer dans une telle recherche. Seulement, les dimensions en jeu sont très petites et les gradients de

température très élevés. En conséquence il faut choisir le mode de conversion efficace et approprié. Pour la propulsion et la mise en mouvement des pièces mécaniques (moteurs), il y a un sérieux problème de perte de charge, car le régime est essentiellement laminaire. Il faut concevoir des dispositifs de mélange des réactifs microscopiques. De même, lorsque l'énergie thermique est utilisée, sa constance dans le maintien de la chaleur produite et le niveau de température le long de la paroi est importante.

- La mise en œuvre

Quoique la chambre de combustion soit la pièce maîtresse, plusieurs autres éléments s'y greffent, tels que le compresseur pour l'écoulement du mélange réactif, les capteurs, le réservoir des combustibles et du comburant, avec un seul et même objectif, celui des dimensions réduites de l'ensemble du dispositif. Les problèmes de fabrication sont donc importants.

- Rendement et optimisation

Les hydrocarbures gazeux sont ceux essentiellement utilisés dans les MPG, à savoir l'Éthanol, l'Hydrogène, le Propane et le Méthane pour leur potentiel énergétique et aussi pour les températures moins élevées d'auto ignition qu'ils exigent. Seulement les rendements de ces dispositifs restent faibles de l'ordre de 10% voire moins et les problèmes posés sont ceux de prises des données, l'utilisation des capteurs ou des sondes reste difficile. L'une des solutions à ce problème est la modélisation et la simulation numérique, qui elle-même pose le problème des outils de modélisation et de simulation.

1.3.3. *Problématique du sujet de notre thèse*

Même si la micro combustion est aujourd'hui rendue possible, les problèmes posés ne sont pas tous résolus. Les problèmes dont les solutions ont été trouvées ou proposées restent toujours à améliorer. La problématique de ma thèse se situe par rapport à celles générales de :

- La génération d'une flamme auto-entretenu.
- Le dimensionnement du micro réacteur.

Ici, le problème est celui de l'étude de la stabilisation de la flamme et des paramètres qui l'affectent, de la production des polluants, de la diminution des dimensions du micro réacteur dans l'ordre de grandeur du nano mètre. La problématique de cette thèse est donc:

- L'étude de l'empreinte environnementale des dispositifs microscopiques.

Afin de résoudre cette problématique, nous avons choisi l'étude de la combustion du méthane/air dans un micro réacteur avec une géométrie simple, un modèle de forme rectangulaire a été choisi pour tous nos calculs.

- Le but de nos travaux de thèse revient donc à déterminer la qualité et la quantité des polluants produits par la combustion du méthane dans un micro réacteur, le rendement et l'optimisation des micros réacteurs.

Bien que la modélisation numérique ait facilité grandement l'émergence des MPG en permettant d'avoir des données sur les paramètres de fonctionnement (ordre de grandeur des températures, de la vitesse d'écoulement, le niveau de pression dans le milieu d'écoulement et la conversion des réactifs), il existe somme toute plusieurs contraintes à vaincre pour des travaux de simulation en micro combustion.

En effet les simulations numériques des micros flammes présentent une contrainte importante à savoir celle du choix de la cinétique chimique à utiliser. Pour se faire, on a le choix entre une cinétique chimique détaillée ou une cinétique chimique réduite, afin de produire numériquement une flamme dont les données se rapprocheraient des valeurs expérimentales ou pratiques. Il est judicieux de s'appuyer sur une cinétique chimique détaillée dont les résultats sont, de manière globale, proches des données réelles. Cependant un tel choix entraîne le suivi d'au moins une centaine d'équations chimiques et d'encore plus d'espèces chimiques. Si dans le cadre d'une étude en une dimension (1D) on peut le faire, la difficulté est beaucoup plus grande lorsque nous devons le faire en deux dimensions (2D) voire trois dimensions (3D), car en ce moment on devrait être capable de résoudre un millier d'équations différentielles, ce qui nécessite une puissance d'ordinateur de calcul et un temps d'opérations important. Seulement les informations qui sont données par une cinétique détaillée ne sont pas toujours nécessaires, c'est pourquoi une cinétique chimique réduite à la place est préférable. Une cinétique chimique simplifiée permet d'avoir des données qui ne sont peut-être pas précises, mais au moins, qui sont proches de la réalité et peut donc permettre la production numérique d'une flamme. Elles peuvent donc permettre l'analyse de sa stabilité, l'évaluation des polluants et une étude d'optimisation de la dimension d'entrée du réacteur. Dans le cadre de notre travail nous avons fait le choix de l'utilisation d'une cinétique chimique réduite dans toutes nos simulations.

1.3.4. *Objectifs*

- ✓ Le premier objectif consiste à modéliser et simuler une micro flamme pour;
 - Identifier les paramètres qui affectent la production d'une micro flamme
 - Stabiliser la micro flamme

- Ressortir les différences et les similitudes
- Décrire le comportement de la micro flamme
- Comprendre et expliquer le processus de transfert de chaleur à travers les parois
 - ✓ Le second objectif est d'analyser quantitativement et qualitativement les émissions polluantes d'un micro réacteur pour
- Identifier le type et la quantité de polluants qui se forment
- Décrire la formation de ces polluants
 - ✓ Enfin, le troisième objectif consiste à explorer la faisabilité de la nano combustion pour
- Établir les dimensions critiques
- Proposer une géométrie appropriée.

1.3.5. *Méthodologie*

- ✓ Pour atteindre le premier objectif, nous avons choisi de faire nos analyses à partir d'une flamme simulée numériquement en 2D obtenu à l'aide du logiciel Comsol 4.2a, en utilisant un schéma de cinétique réduit. Cette flamme numérique est produite à partir des réactifs méthane/air pré mélangés dans un réacteur 2D rectangulaire.
- ✓ Pour atteindre le deuxième objectif, on fait l'hypothèse que les polluants émis par les micros réacteurs sont en quantité minimes et non nocifs. C'est-à-dire que dans notre étude on mettra un accent sur les polluants majoritaires susceptibles d'être produits par une réaction de combustion. Ce qui revient à simuler une micro flamme de pré mélange méthane /air dans un micro réacteur 2D à l'aide du logiciel Comsol 4.2a , avec un schéma cinétique réduit à quatre équations, faire une étude

comparative de la forme de la flamme. Faire une analyse quantitative et qualitative de la formation des polluants, pour chacune des simulations réalisées avec une richesse de pré mélange définie.

- ✓ Pour atteindre le troisième objectif, on fait l'hypothèse qu'il est possible de générer une flamme de combustion dans un réacteur dont la dimension d'entrée des réactifs est inférieure à $150\mu\text{m}$ qui est la plus petite dimension d'entrée du prototype d'un micro réacteur existant. Il s'agit de réduire pour chacun des réacteurs les dimensions d'entrée des réactifs à l'ordre du nano mètre, analyser leur impact sur la formation de la flamme et sa stabilité.
- Proposer un modèle géométrique adapté pour une optimisation des dimensions à l'ordre de l'échelle du nano mètre.

1.3.6. *Originalité de la thèse*

L'évolution de la technologie en micro combustion est forte et l'on peut s'en apercevoir à travers l'amélioration des performances des systèmes existants. Dans le cadre de la micro combustion plusieurs études ont été menées sur les flammes, leur caractérisation et leur comportement. Il en sera question dans ce travail, son originalité sera de s'attarder sur l'empreinte environnementale de ce type de dispositifs. Étant donné qu'une des applications possibles des MPG est de remplacer les batteries dans leur utilisation quotidienne (téléphones, laptop, et autres), aucune étude à nos jours n'a été faite sur les polluants générés. De même il n'a pas encore été démontré la faisabilité de la nano combustion, possibilité qui sera discutée dans ce travail. Cette recherche est d'autant plus pertinente du fait des objectifs recherchés tels que l'influence de la cinétique chimique sur la forme de la flamme qui permettrait de façon pratique de mieux dimensionner la pompe

de mélange des réactifs, la détermination des polluants nocifs produits par des micro réacteur afin d'envisager des capteurs spécifiques de polluants, la réduction des dimensions du micro réacteur pour une production d'énergie optimale.

1.3.7. *Impacts et retombées*

- L'étude des effets de la cinétique chimique sur la stabilité de la micro flamme permettrait une meilleure prédiction des paramètres de fonctionnement permettant un choix de matériaux plus adéquats pour les parois et un dimensionnement approprié du compresseur d'alimentation des réactifs.
- L'étude de l'empreinte environnementale des micros réacteurs, donnera une assurance aussi bien aux utilisateurs qu'aux concepteurs des micros réacteurs à l'utilisation sécuritaire des MPG.
- L'optimisation des dimensions du micro réacteur ouvrirait la voie à la production d'une énergie portative importante par des dispositifs extrêmement petits, de même qu'il faciliterait leur intégration dans des nouveaux marchés tel que le marché bio médical.

1.4. **Organisation de la thèse**

Afin de résoudre la problématique posée par le sujet de la ***Modélisation des flammes et de la formation des polluants en micro et nano combustion***, la thèse s'articulera autour de huit (8) chapitres :

Le chapitre 1 qui est la partie introductive, situe le thème dans le contexte actuel du besoin croissant des énergies portatives qui a permis de susciter l'intérêt pour la micro

production d'énergie. De plus il présente la problématique du sujet, le but et les objectifs à atteindre.

Le chapitre 2 est un état de l'art, une revue de la littérature sur les MPG (Micro Power Generator) qui retrace l'évolution de la recherche sur le sujet dans la période allant de 2002 à 2014.

Le chapitre 3 est un état des lieux sur, l'utilisation et la conversion d'énergie en micro combustion, la modélisation numérique en micro combustion. Il présente les différents prototypes conçus à ce jour, les solutions proposées afin de pouvoir générer une micro flamme dans ces dispositifs.

Le chapitre 4 est une étude exhaustive des flammes laminares en micro combustion ressortant les caractéristiques et les différences entre la micro combustion et la macro combustion.

Le chapitre 5 présente la simulation d'une flamme pré mélangée de méthane/air en 2D. Une étude comparative est menée afin de comprendre quel est l'impact du choix d'un modèle de cinétique chimique simplifiée à une équation globale sur la stabilité de la flamme.

Le chapitre 6 s'attarde sur l'étude de la production des polluants dans les dispositifs microscopiques sur la base des simulations réalisées pour une flamme de pré mélange méthane/air. En effet, les flammes de pré mélanges sont moins susceptibles de produire des polluants, puisque le mélange est fait à l'extérieur et dans les proportions permettant une bonne combustion ce qui pourra être vérifié.

Le chapitre 7 est consacré à l'optimisation des dimensions des micros chambres de combustion. Dans ce chapitre nous recherchons la plus petite dimension d'entrée des réactifs permettant la stabilisation d'une flamme dans un réacteur.

Le chapitre 8 ou la conclusion, elle permet de ressortir la plus-value apportée dans le domaine, les limites qui se sont révélées, ce qui aidera à faire des recommandations et des suggestions.

La dernière partie, telle la présentation des travaux effectués, vulgarisés ou publiés, donne un aperçu du parcours effectué tout au long des travaux, tout comme la bibliographie.

Chapitre 2 - Revue de la littérature en micro combustion

2.1 Introduction

Le besoin en énergie portative de plus en plus croissant a contribué à la naissance du concept des MPG (Micro Power Generator) dont le potentiel énergétique laissait présager dans le courant de l'année 1995 un avenir prometteur seulement sa mise en œuvre n'avait rien d'acquis tant les difficultés présentes semblaient insurmontables ; plusieurs chercheurs avaient pensé que les dimensions critiques de production d'une flamme de combustion seraient uniquement valables à l'échelle millimétrique (méso). Cependant, des avancées ont été réalisées et, aujourd'hui, une abondante littérature nous permet de comprendre que plusieurs barrières ont été levées et la micro combustion est passée du stade de postulat au stade de la vulgarisation. L'état de l'art que nous présentons prend en compte les productions scientifiques parues au cours de la période de 2000 à 2014. Il décrit les problèmes de la micro combustion et l'évolution des solutions apportées.

2.2 De la macro combustion à la micro combustion

Dans un système macroscopique de production de chaleur, les grandeurs caractéristiques géométriques sont importantes. Il en est de même de celles caractérisant les écoulements dans ces systèmes, ce qui n'est pas le cas dans un système microscopique. On a donc des grandeurs adimensionnelles importantes comme celles des nombres de

Reynolds (Re) et de Peclet (Pe) qui caractérisent l'écoulement dans le micro réacteur avec un ordre de grandeur faible;

$$Re = \frac{\rho_0 v_0 l_0}{\mu} \quad (2.1)$$

$$Pe = Re.Pr = \rho C_p v_0 (T_1 - T_2) / l_0 / k (T_1 - T_0) / l_0^2 \quad (2.2)$$

ρ_0 est la masse volumique, v_0 la vitesse à l'entrée du fluide réactionnel, l_0 grandeur d'entrée du réacteur, μ la viscosité dynamique, k la conductivité thermique, T_0 température initiale, T_1 température d'ignition, T_2 température de combustion.

La conséquence de l'ordre de grandeur faible de ces nombres adimensionnels est que le nombre de Reynolds soit faible, de sorte que les écoulements soient laminaires dans ce type de dispositif et que les effets diffusifs et de viscosité sont moins prépondérants que les effets convectifs. Aussi, exprime t-on le temps caractéristique t_c sous la forme;

$$t_c = l_c / v_c \quad (2.3)$$

l_c est la longueur caractéristique du parcours des réactifs ou longueur du réacteur, v_c vitesse moyenne d'écoulement du fluide réactionnel.

Les conditions aux limites nous donnent très souvent des renseignements sur les effets de parois qui ont une influence sur les paramètres d'écoulement. En macro combustion, certains de ces aspects sont négligés, car ils n'influencent en rien le déroulement de la combustion, ce qui est le cas particulièrement des parois d'une chambre de combustion.

Dans les chambres de combustion microscopiques les dimensions sont faibles, les nombres de Re et de Pe diminuent, les écoulements tendent à être moins turbulents, la flamme fait corps avec les parois, les effets de viscosité, de transport diffusif de masse et

de chaleur tendent à prendre de l'ampleur. L'enjeu devient celui du temps caractéristique, qui diminue mais doit absolument rester supérieur à celui du temps chimique t_c ;

$$t_c = \rho_c / \dot{\omega} \quad (2.4)$$

afin que la combustion complète puisse se réaliser [1, 8]. ρ_c est masse volumique du mélange des réactifs, et $\dot{\omega}$ est le taux de réaction.

On peut donc tirer comme hypothèses que plus les dimensions de notre chambre de combustion sont faibles, plus le régime d'écoulement prépondérant sera laminaire, les termes de viscosité et de diffusion seront importants, les effets convectifs et de poussée seront négligeables.

Le tableau 2.1 propose une comparaison de certaines grandeurs caractéristiques en macro et micro combustion.

Tableau 2.1 Comparaison des variables caractéristiques des macro et micro chambres de combustion[4]

Variables	Macro-chambre de combustion	Micro-chambre de combustion
Échelle de longueur	~ 0, 2 m	5.10^{-04} à 1.10^{-02} m
Ration Surface/volume	Petit (~ 4)	Très grand (~200)
Pression d'entrée	~ 4Mpa	0.001-0.4 MPa
Température d'entrée	ambiante	ambiante
Débit massique	~ 140 kg/s	$0.01.10^{-03}$ - 2.10^{-03} kg/s
Temps de résidence	~ 7ms	~ 7ms
Ratio Thrust-poids	20 :1	100 :1
Efficacité de combustion	~ 99,9%	~ 70-80%
Densité de puissance	1960 MW/m ³	3000 MW/m ³

De façon générale, la micro combustion posera des problèmes plus ou moins différents de ceux rencontrés en macro combustion. Dans les dispositifs de dimensions très petites les problèmes à faire face sont ceux de la résistance de la structure des parois du réacteur qui doivent subir des températures importantes sans toutefois fondre ou se fissurer sur les points sensibles. La qualité du matériau et tout particulièrement la conductivité thermique sont des paramètres à surveiller afin d'éviter une perte de chaleur pariétale importante. Le type de combustible, le type de flamme à produire, les problèmes de stabilité de la flamme sans toutefois oublier les problèmes de pollution environnementale sont des axes de recherche dans plusieurs laboratoires.

2.2.1 Problèmes généraux de la micro combustion

En 2002, Vican, J. et *al.* publient un article intitulé « Development of a microreactor as a thermal source for microelectromechanical systems power generation »[9] dans lequel il propose un micro réacteur en céramique d'aluminium de dimensions 12,5 mm x 12,5 mm x 5 mm en utilisant un procédé de stéréolithographie. Le micro réacteur est formé des canaux doublés en forme de spirale afin de faciliter les échanges de chaleur élevés entre d'une part les réactifs et les produits de combustion et d'autre part l'écoulement de chaleur à travers le corps du réacteur. L'auto maintien de la combustion du mélange air/hydrogène a été prouvé au travers d'un large éventail de mélanges fuel/air de ratios équivalents compris entre 0,2 et 1 avec des puissances énergétiques développées comprises entre 2 et 16 W. Le dépôt de platine sur les parois du micro réacteur a permis l'ignition à ou proche de la température ambiante. L'auto maintien des opérations s'est fait à une température avoisinante 1700 °K et est stabilisé par une combinaison de phénomènes de réactions de surface et de phase gazeuse. La dégradation catalytique a été observée pour des

températures opératives très élevées ce qui entraîne la perte des capacités de ré ignition.

En 2003, Cadou, C., T. Leach, *et al.* proposent une étude de la micro combustion pour les systèmes de propulsion de nano et pico satellites[10], il y ressort que le rendement des chambres de combustion à l'échelle millimétrique destinées à la propulsion des micro, nano et pico satellites est fortement influencé par l'échange de chaleur à l'intérieur de la structure de la micro chambre de combustion. Ils établissent que cet échange de chaleur peut augmenter la vitesse de combustion et l'épaisseur de la zone de réaction. La même année, Norton, D.G. et Vlachos, D.G. [11] publient les caractéristiques de la combustion et de la stabilité de la flamme à la micro échelle à travers une étude CFD (Computational Fluids Dynamics) des pré mélanges méthane /air. Un modèle CFD à deux dimensions elliptiques du micro brûleur est résolu afin d'étudier les effets sur la stabilité de la flamme des dimensions de la micro chambre de combustion, la conductivité, l'épaisseur des matériaux des parois, les pertes de chaleur externes. Ils constatent que la conductivité et l'épaisseur des parois sont très importantes, car elles déterminent le transfert de chaleur en amont, ce qui est nécessaire à l'allumage et à la stabilité de la flamme, de même ils démontrent qu'il existe une gamme étroite de vitesses d'écoulement qui permet la combustion soutenue dans un micro brûleur. D'importants gradients transversal et axial sont observés même à ces petites échelles, sous certaines conditions ainsi que des oscillations périodiques proches de l'extinction en cas de pertes de chaleur importantes à travers les parois. La même année Yang, W.M. *et al.* [11] mènent des recherches sur la micro combustion pour l'alimentation des micros systèmes thermo photovoltaïques. Dans l'étude expérimentale qu'ils proposent, la structure du micro système cubique d'un volume de 1 cm^3 , il est alimenté par de l'hydrogène et développe une puissance électrique

comprise entre 3 et 10 W. Une distribution de température élevée et uniforme le long de la paroi du micro réacteur pour avoir à la sortie une puissance électrique est préconisée. Cependant, le maintien de la combustion dans les dimensions du réacteur est fortement affecté par l'augmentation des pertes de chaleur dues à l'importance du ratio surface volume qui tend à atténuer l'ignition et à éteindre la réaction. Il ressort de leur expérience et des simulations faites qu'une température élevée et uniforme peut être obtenue le long des parois [11].

En 2004, A.H, Epstein fait l'état de l'art sur le développement technologique et commercial des micro-turbines, des MEMS dans leur globalité, il fait le constat selon lequel le rendement espéré des micros moteurs est sur un même pied d'égalité que celui des turbines à gaz des années 1940 [12]. Les systèmes thermodynamiques des micros turbines à gaz sont les mêmes que ceux des macros turbines, mais les mécanismes diffèrent en raison des considérations d'échelle et des contraintes de fabrication. Dans la même année, Miesse, C.M. et *al.* publient un article fort intéressant sur la combustion à l'échelle sous millimétrique[13]; ils établissent que la micro combustion est possible si la composition de la paroi et sa structure sont soigneusement contrôlées, ils suggèrent pour cela trois solutions :

- 1- Les parois doivent être fabriquées à partir de matériaux qui ne détruisent pas des radicaux libres, de sorte que les réactions de combustion en phase gazeuse peuvent se produire sans entrave [13].
- 2- Le dispositif doit être assez bien isolé afin que la production de chaleur nette soit suffisante pour maintenir les réactifs chauds et avoir une combustion importante.
- 3- Afin d'éviter la perforation des parois du micro réacteur, la température de la flamme

doit être suffisamment faible par rapport à la température critique que peut supporter le matériau des parois du réacteur.

En 2004 dans une étude similaire à celle qu'ils ont produite en 2003, Norton, D.G. et Vlachos, D.G. font une étude CFD de la stabilité de la micro flamme du mélange propane/Air [14] et arrivent quasiment aux mêmes conclusions élaborées précédemment, c'est-à-dire que de gradients de température importants sont observés malgré les petites échelles de dimensions, la conductivité thermique des parois est essentielle pour la stabilité de la flamme du micro système, une gamme de vitesse permet de stabiliser la combustion dans les micros chambres. De même Norton, D.G. et Vlachos, D.G. démontrent que les dimensions du micro brûleur affectent fortement la stabilité thermique, ce que constate aussi en 2006 Leach, T.T.[15].

En 2005, Lee, P.S. et *al.* font une étude sur le transfert de chaleur dans des micro-canaux rectangulaires; selon les investigations expérimentales réalisées, une approche de l'analyse conventionnelle peut être utilisée pour prédire le comportement de transfert de chaleur dans ce type de dispositifs[16].

2.3 Stabilité de la combustion dans les microstructures

Le potentiel des micros réacteurs est démontré, les problèmes posés dans la micro chambre de combustion sont cernés, seulement jusqu'en 2005 les problèmes de la micro combustion étaient mal compris comme l'affirment Armijo, A.D. et *al.* [17]. Ils se proposent d'examiner la structure de la combustion sur l'échelle microscopique; ils font le constat selon lequel les flammes de diffusion ne peuvent exister dans des dimensions plus petites que 100 micromètres et que la structure des flammes sur l'échelle microscopique

est bien différente de celle des flammes sur l'échelle macroscopique. Au lieu d'avoir des flammes en continu, elles se divisent en cellules individuelles de flammes tout au long du micro réacteur. Chaque cellule présente un crochet différent des crochets classiques, ce crochet pointant du côté du comburant plutôt que celui du carburant. Dans une micro combustion, la structure de la flamme est peu influencée par la stœchiométrie du mélange et le chemin suivi par la flamme, mais elle est fortement affectée par le débit d'écoulement et le transfert de chaleur à travers les parois. Ces résultats permettent de comprendre que les micros flammes sont stabilisées par un équilibre entre :

- La diffusion des réactifs dans la zone de combustion
- Le transport de chaleur par conduction et par convection le long de la paroi

Dans le même ordre d'idée et la même année Hua, J. et *al.* font la simulation numérique de la combustion du mélange hydrogène/air dans des micros chambres de combustion, cette étude aura deux parties. Dans la première partie[18], les simulations numériques ont été effectuées par un code CFD pour étudier la combustion stœchiométrique du pré mélange hydrogène/air dans un certain nombre de chambres de combustion cylindriques. Le mécanisme détaillé des réactions chimiques est introduit dans les simulations qui se composent d'un modèle de dix-neuf réactions réversibles élémentaires et de neuf espèces. Afin d'étudier l'effet du dimensionnement sur la combustion, le ratio de la chambre de combustion est resté le même dans toutes les simulations alors que les dimensions d'entrée du micro brûleur (diamètres) sont réduites du millimètre au micromètre. Dans cet article, les auteurs analysent les effets du paramètre géométrique du réacteur, la propagation de chaleur à travers les parois, et les caractéristiques de la combustion. Les résultats obtenus valident tout d'abord l'utilisation des codes CFD pour l'étude des écoulements réactifs dans

les micros chambres de combustion, indiquent que la stabilité de la combustion dans la micro chambre peut être obtenue en équilibrant le temps de combustion et le temps de résidence des réactifs ainsi qu'en optimisant les conditions thermiques entre la chaleur générée et celle perdue. Étant donné que le temps de résidence est raccourci par des dimensions faibles du micro réacteur, il convient aussi que le temps de réaction chimique soit également raccourci afin d'assurer une combustion complète. Selon la théorie de la cinétique chimique, l'une des façons de réduire le temps chimique est d'augmenter la vitesse de réaction en s'assurant que sa température soit élevée, ce qui peut être réalisé dans des microréacteurs en réduisant les pertes de chaleur pariétales. La deuxième partie de cet article[19] quant à elle s'attarde sur l'étude de la dynamique de l'écoulement des fluides, sur le transfert thermique au sein de la chambre de combustion et la perte de chaleur à température ambiante. Les expériences sont effectuées sur le prototype de micro turbine à gaz de MIT (Massachusetts Institute and Technology, USA). Les performances du dispositif sont évaluées par rapport aux conditions de pertes de chaleur vers l'extérieur, à différents débits massiques et à diverses fractions massiques du mélange. Il ressort de cet article qu'une faible température des parois de la micro chambre de combustion est nécessaire pour stabiliser la flamme et augmenter par là l'efficacité du système. Pour avoir une faible température de paroi, la combustion pauvre est suggérée, ce qui semble être corroboré par Li, Z.W. et *al.* qui montrent que la micro combustion à proximité de la zone d'un mélange stœchiométrique est la moins efficace pour la micro combustion [20]. La variation des rapports d'équivalence permet de comprendre que, pour des rapports d'équivalence faible, la flamme est soufflée voir éteinte en partie mais pour des rapports d'équivalence importants il se produit en amont du réacteur l'éruption de la flamme.

Lorsque le débit massique des réactifs est faible, les performances de la chambre de combustion sont limitées par une mauvaise efficacité thermique ce qui entraîne l'extinction de la flamme. D'autre part lorsque les débits sont élevés la flamme est soufflée, ces deux phénomènes impliquent l'existence d'une plage de vitesses par lesquelles la micro combustion est réalisée. Les pertes de chaleur à travers les parois de la chambre de combustion sont néfastes pour avoir une flamme stable, lorsqu'elles sont importantes, la température des parois chute et devient moins élevée que celle de l'auto inflammation des réactifs et donc engendre une difficulté pour l'auto maintien de la combustion; d'un autre côté si la température de la paroi est plus élevée que celle de l'auto inflammation des réactifs, alors il peut se produire une combustion en amont du réacteur.

En 2007, N. Kaisare et D.G. Vlachos proposent le concept de flux inverse (RF) pour étendre la région de stabilité de la combustion à l'échelle microscopique. Ils démontrent qu'une augmentation significative des limites de stabilité peut être obtenue en utilisant l'opération de « reverse flow »(RF) [21]. Dans le système de RF les ports de sortie et d'entrée sont régulièrement commutés. Ainsi, l'énergie stockée dans la structure solide en un cycle est libérée et transmise au flux froid entrant dans le prochain cycle, résultant à la recirculation de chaleur. La même année ils étudient les dimensions optimales d'un micro réacteur pour une combustion homogène; selon eux une largeur de fente optimale de l'ordre de 600-1200 μm (micro-méso échelle) fournit la plus grande plage de stabilité pour une combustion auto entretenue. L'augmentation de la longueur du réacteur conduit au rétrécissement de cette région étant donné qu'elle contribue à augmenter les pertes de chaleur à travers la paroi [22]. Ils concluent aussi à l'influence du type de combustible sur la stabilité de la flamme par rapport aux dimensions du microréacteur, la flamme produite

par la combustion du méthane par exemple est plus sensible à ces effets que celle du propane.

En 2008, Federici, J. et Vlachos, D.G. se penchent sur la stabilité d'un micro brûleur à canal unique de recirculation de chaleur en comparant les résultats obtenus à ceux des micro réacteurs sans recirculation de chaleur, l'étude numérique de la dynamique de fluide dans ce type de système tient compte du coefficient critique de perte de chaleur, de l'énergie globale perdue et de la vitesse critique d'entrée des réactifs. Les effets de la longueur du réacteur et de l'épaisseur des parois sont aussi étudiés. Il est démontré par cette étude que la recirculation de chaleur affecte profondément l'éruption de la flamme car elle participe au préchauffage des gaz froids entrants, mais a un effet minime sur l'extinction de la flamme. La paroi d'entrée du canal de recirculation impacte plus la stabilité de la flamme que celle de sortie[23].

En 2009, Prakash, S., R. Akberov, *et al.* mettent en évidence l'influence des conditions limites sur la micro combustion[24]. Ils notent que les débits d'entrée des réactifs, leur composition relative, les conditions aux limites thermiques tenant compte de la conductivité thermique des parois, de la convection de chaleur extérieure, du rayonnement intérieur du microréacteur, déterminent tous la position, la structure et la température de la micro flamme. Leur modèle montre l'importance de la prise en compte du transfert radiatif de chaleur dans la formation de la flamme et sa stabilité.

En 2010, Jejurkar, S. Y., D. P. Mishra, *et al.* suggèrent le pré chauffage des réactifs pour améliorer la stabilité de la flamme dans un microréacteur. Ils vont étudier la sensibilité de la flamme à l'évolution de la température d'entrée d'un microréacteur cylindrique brûlant un mélange stœchiométrique air/hydrogène. La configuration proposée utilise un

tube intérieur creux rempli d'azote afin de faciliter la stabilisation de la flamme. Un modèle détaillé axisymétrique numérique d'écoulements réactifs a été développé et testé à cette fin. Les prédictions du modèle ont été utilisées pour évaluer convenablement la conception proposée pour les turbines à gaz et d'autres applications en matière de différents indicateurs de performance thermique. Les données de base ont montré la faisabilité de cette opération[25].

En 2011, Zamashchikov, V. et E. Tikhomolov étudient expérimentalement et numériquement la combustion critique d'un mélange pauvre d'hydrogène/air dans un micro réacteur formé de deux disques de quartz [7]. Leurs expériences ont permis de déterminer les différentes grandeurs d'entrée et compositions du mélange pour une combustion stable en régimes stationnaires. De plus, ils font le constat selon lequel la vitesse de combustion atteint des valeurs plus élevées que celles de la vitesse laminaire de combustion, aussi vont-ils mettre sur pied un modèle numérique de réaction diffusion afin de corroborer ces observations. Différents facteurs vont être numériquement testés tels que les conditions limites de vitesse, l'irradiation des parois intérieures de quartz, l'augmentation du taux de réaction chimique proche des parois. Les résultats numériques obtenus iront dans le même sens des observations faites; il ressort en outre que pour des vitesses de front de flamme importantes et pour des dimensions critiques d'entrée le front de flamme devient vite instable.

En 2012, Fan, A., K. Maruta, *et al.* font une étude expérimentale de modèle de flamme dans une chambre de combustion cylindre à parois chauffées [26]. Les phénomènes transitoires observés ont été déclenchés par les variations du ratio d'équivalence ou les vitesses d'entrée du mélange; ces phénomènes sont enregistrés par une caméra numérique

haute vitesse. D'après les enregistrements, il est démontré que les mécanismes responsables de ces transitions peuvent être classés en deux catégories:

1. Les passages d'une flamme circulaire stable à une flamme transitoire, et d'une flamme transitoire à une flamme simple ou double, qualifiée de flamme Pelton, due à l'extinction locale dans le front de flamme ;

2. Le passage d'une flamme circulaire instable à une flamme de forme spirale due à une division locale du front de flamme.

La simulation numérique de l'écoulement isothermique a démontré que le champ d'écoulement est symétrique et régulier lorsque la vitesse d'entrée est faible, mais il devient asymétrique et instable à des vitesses d'entrée importantes. Le champ d'écoulement asymétrique et instable devrait être la raison possible de la division locale de front de flamme. D'autre part, la flamme s'éteint à proximité de la surface de paroi. Ces deux motifs expliqueraient le passage d'une flamme instable à une flamme rotative en forme de spirale.

2.4 Transfert de chaleur à travers les parois d'un microréacteur

Les problèmes rencontrés dans les microréacteurs sont : l'extinction locale de la flamme, le soufflement, l'éruption et l'auto maintien de la flamme. Ils sont en grande partie attribués aux pertes de chaleur à travers les parois et à l'interaction parois flamme. Dans le cadre de la micro combustion, les échanges de chaleur autour de la paroi de la chambre de combustion jouent un rôle crucial. La combustion se déroule dans une fente étroite et la flamme fait quasiment corps avec les parois internes du réacteur. Le transfert thermique est donc prépondérant, par conduction, convection et par rayonnement. En outre, il se pose un

problème spécifique de résistance de matériaux étant donné les températures élevées de fonctionnement et la localisation de la flamme qui crée des spots (point de chaud localisé). Les microréacteurs sont pour la plupart de forme cylindrique, rectangulaire et même multiforme, selon le type de flamme produite, les dimensions critiques qu'on veut atteindre et même le type de combustible. Les parois sont constituées de matériaux tels que la céramique d'aluminium [9], l'alumine polycrystalline [27], l'alumine [28-30], les tubes de quartz [31], des tubes en acier inoxydable [32].

En 2008, Li, J. et B. Zhong présentent une étude expérimentale pour évaluer la perte de chaleur à travers divers micros tubes de même diamètre (3 mm) pour une combustion du méthane/oxygène, les données sont comparées entre celles du tube en acier inoxydable et en céramique [32]. Les pertes de chaleur de la micro chambre de combustion dont le tube est en acier inoxydable sont de 22% de la chaleur totale produite. Puisque l'émissivité de paroi du tube en acier inoxydable est plus grande que celle du tube en céramique, la perte de chaleur par rayonnement était plus grande et estimée à 70% de la perte totale de chaleur. En outre, étant donné que la conductivité thermique de la céramique est inférieure à celle de l'acier inoxydable, un gradient de température le long de l'axe est plus grand que celle du tube en acier inoxydable, ce qui est désavantageux pour le transfert de chaleur et la stabilisation de la flamme le long de l'axe.

En 2011, Jejurkar, S. et D. Mishra proposent un article sur les effets de la géométrie d'une chambre cylindrique de combustion d'une flamme pré mélangée d'hydrogène/air [33], ils préconisent que la conception géométrique des micros chambres de combustion doit permettre d'équilibrer convenablement les deux processus compétitifs dans un micro

réacteur pour une performance optimale à savoir pertes de chaleur à travers les parois et chaleur dégagée par l'écoulement réactif.

En 2008, Spadaccini, C. M. et I. A. Waitz [34] classifient les micros chambres de combustion en deux catégories :

- Chambres de combustion homogène en phase gazeuse
- Chambre de combustion catalytique

Les micros chambres de combustion en phase gazeuse sont limitées par des contraintes de temps de résidence qui peuvent être quantifiées en termes de nombre de Damkohler. La performance des micros chambres catalytiques est limitée par la diffusion des espèces de combustible à la surface active tel que décrit par le nombre de Péclet, les deux types de systèmes sont vulnérables aux pertes thermiques.

En 2009, Jejurkar, S. Y. et D. P. Mishra [4] proposent un tableau comparatif des chambres de combustion homogène et hétérogène.

Tableau 2.2 Comparaison de la micro combustion homogène et hétérogène[4]

Paramètres	Micro-combustion	
	Catalytique	Homogène
Surface spécifique (m^2/m^2)	Très élevée(1500)	Moins élevée
Température d'opération	Faible (773 K)	Élevée (1473K)
Flammabilité	Limites larges	Limites restreintes
Mise en route	Facile	Difficile
Fabrication	Complicquée	Pratique

En 2009, Lee, I. et A. R. L. A. MD font une étude sur les différents systèmes de combustion utilisés dans les MEMS[35], la micro combustion diffère de la méso combustion ou de celle à grande échelle (macro combustion), en général. Comme les dimensions de la chambre de combustion baissent, le ratio surface sur volume (S/V) augmente. Les effets de surface (phénomènes interfaciaux) et l'échelle de temps deviennent plus importants. La recirculation de la chaleur, la combustion dans les milieux poreux et la combustion catalytique sont utilisées pour réaliser la micro combustion. Les dispositifs de micro combustion peuvent être intégrés aux systèmes thermoélectriques, thermo photovoltaïques et piézoélectriques pour les applications de puissance et de production d'énergie.

2.4.1 La combustion homogène en phase gazeuse

La combustion homogène en phase gazeuse se fait à partir d'un mélange de combustible et de comburant dans des conditions de proportion et de vitesses pouvant générer une flamme auto entretenue. Le problème principal de la micro combustion homogène à ses débuts était celui de la présence des radicaux libres issus de la matière des parois qui provoquaient l'extinction de la flamme[36, 37]. En 2003, Jensen, C., R. Masel, et *al.* affirmaient que la clé de la réalisation d'une micro flamme homogène résidait dans la maîtrise de la composition physico chimique des parois du micro réacteur et celle des pertes de chaleur à travers les parois. Ces problèmes ont emmené les chercheurs à proposer des traitements des parois ou même des compositions chimiques des matériaux pouvant annuler le problème d'extinction de la flamme dû aux radicaux libres[1, 38], actuellement ce problème est totalement résolu et de nouveaux matériaux qui ont vu le jour permettent la

combustion dans un espace de confinement sans qu'on ne soit obligé de procéder à un traitement de surface préalable.

2.4.2 La combustion catalytique (hétérogène)

La combustion catalytique est une combustion en présence d'un catalyseur déposé sur les parois de la micro chambre de combustion ou tout simplement participant au mélange des réactifs; le catalyseur peut être par exemple le platine ou dans une certaine mesure un autre combustible dont le rôle est juste d'activer la combustion. En 2010, Seshadri, V. et N. S. Kaisare proposent des stratégies pour des mélanges de réactifs dans des micros brûleurs catalytiques[39]. Ils font une étude numérique de l'ignition des mélanges méthane/air et propane/air dans des micros brûleurs plan avec le platine comme catalyseur et vont montrer qu'ajouter une petite quantité de propane pour la combustion du méthane/air réduit la température d'ignition. La même année, ils proposent une étude similaire en utilisant le propane pour une ignition facile du mélange hydrogène/air[40]. La température d'ignition des réactifs est plus faible et les températures générées sont moins élevées que celles de la combustion homogène, aussi peut-elle se dérouler sans flamme. En 2009, Federici, J. A., E. D. Wetzel, et *al.* font une étude de la stabilité des micros brûleurs catalytiques simples et à recirculation de chaleur, ils constatent que pour des micros chambres de combustion dont les parois ont une conductivité thermique élevée, la stabilité de la combustion est similaire; en revanche lorsque la conductivité thermique des parois est faible et les micros brûleurs catalytiques à recirculation de chaleur ont une meilleure stabilité[41, 42]. La micro combustion catalytique est appliquée dans plusieurs cas de figure, mais surtout lorsque les températures de fonctionnement recherchées sont moins élevées ou avoisinant 1000K[43].

2.4.3 *La micro combustion en milieux poreux*

La combustion en milieux poreux a lieu dans une matrice solide poreuse où on exploite les cavités du milieu pour améliorer la stabilité de la combustion. Dans ce cas de figure, elle peut être homogène ou hétérogène. Les trois modes de transfert de chaleur sont activés, la conduction, la convection et le rayonnement, ce qui améliore le préchauffage du mélange des réactifs non brûlés par les gaz chauds. Le principe de la combustion en milieu poreux s'appuie sur le concept d'excès d'enthalpie [2].

2.5 **Caractérisation des micros flammes de combustion**

Les MEMS sont des micros systèmes électromécaniques ayant plusieurs types de structures miniaturisées. Les MPG sont quant à eux des micros systèmes destinés à la production d'énergie basée sur la combustion. Il y a encore une dizaine d'années, il était quasi impossible de croire à la génération d'une flamme dans des dispositifs aux dimensions microscopiques. Il a fallu attendre 2003 et les travaux expérimentaux de Jensen, C., R. Masel, et *al* [44] pour se convaincre de la faisabilité de la micro combustion, quoique leur prototype n'ait fonctionné que huit heures. Seulement plusieurs études théoriques le laissaient déjà entrevoir[45] .

2.5.1 *Flammes pré mélangées*

En 2005, Li, Z. W., S. K. Chou, et *al.* font une étude expérimentale de l'influence du diamètre de la micro chambre de combustion sur une flamme pré mélangée. Les micros chambres de combustion avec des diamètres variant entre 2 et 6 mm sont étudiées. Les effets du diamètre sur le profil de vitesse transversale, la température, la fraction massique des espèces ainsi que la perte de chaleur axiale volumétrique et la contrainte de cisaillement

de surface sont simulés et analysés. Les résultats montrent qu'il existe une région plate sur les profils transversaux de la flamme de la micro chambre de combustion de 6 mm, profil qui n'existe pas sur celle de 2 mm; la structure non plate reflète les effets de parois [46]. La même année, Maruta, K., T. Kataoka, *et al.* s'attardent sur les flammes pré mélangées en micro combustion; ils utilisent un tube de quartz de 2mm de diamètre chauffé en aval par une source de chaleur externe, ce qui conduit à avoir un gradient de température à l'intérieur du tube. Diverses flammes sont observées, présentant un comportement dynamique, des mouvements oscillatoires cycliques et répétitifs d'allumage et d'extinction de la flamme[31]

En 2006, Kim, K. T., D. H. Lee, *et al.* se proposent d'étudier les causes d'extinction de la flamme dans un micro réacteur. La distance à laquelle elle se produit, mais aussi le rôle joué par la disparition des radicaux libres de la surface des parois[47]; il ressort de leur étude expérimentale que les distances d'extinction sont indépendantes des caractéristiques des parois, de l'absence d'oxygène, de la rugosité limite, ou des impuretés à de faibles températures, ce qui n'est pas le cas lorsque les températures sont élevées, car la disparition des radicaux joue en ce moment un rôle crucial sur le processus d'extinction, les radicaux libres chauffés servant à la ré ignition du mélange réactif froid.

En 2007, Lee, K. H. et O. C. Kwon proposent une étude numérique sur la structure des micros flammes pré mélangées méthane/air pour la production de la micro énergie[48]. Les auteurs révèlent que la stabilité de la micro flamme est affectée par la présence de combustible imbrûlé entre la base de la micro flamme et le bord du micro tube. Ils préconisent que l'injection des réactifs se fasse de manière à éviter un dépôt de réactifs sur la paroi du tube, ce qui atténuerait l'extinction de la flamme.

Tsuboi, Y., T. Yokomori, et *al.* étudient, en 2008, les caractéristiques d'extinction d'une flamme pré mélangée dans un micro canal chauffé à pression réduite. Les effets de la pression, de la vitesse d'écoulement et de la composition du mélange des réactifs sur les limites d'extinction des flammes pré mélangées de méthane/air dans un canal de 2 mm de diamètre avec un gradient de température ont été étudiés expérimentalement et numériquement dans des conditions de faibles pressions (0.2-0.05 atm). On retient que dans de telles conditions, il est possible de simuler des micros flammes, étant donné qu'elles deviennent plus épaisses avec la baisse de pression. Les simulations numériques et les expériences effectuées montrent que les limites maximales supérieures de soufflage de la flamme dans les conditions de faibles pressions se trouvent être du côté du mélange pauvre. Les régions inflammables dans ces conditions montrent une tendance asymétrique dans un ratio de mélange stœchiométrique alors que la région inflammable conventionnelle à pression atmosphérique n'est pas symétrique.

En 2009, Li, J., S. K. Chou, et *al.* à la suite d'une précédente étude sur les micros flammes pré mélangées s'attardent sur le comportement transitoire de celles-ci[49]. Par un dispositif de prise de sons, les émissions acoustiques de la flamme sont analysées. Le but est de faire une étude de la distribution des températures des parois, par rapport au diamètre, à la longueur de la chambre de combustion, à la vitesse d'entrée des réactifs et au ratio équivalent. Il apparaît que, lorsque le micro réacteur fonctionne comme émetteur, l'efficacité maximale du système est atteinte lorsque le ratio équivalent est égal à 0.8 indépendamment de la vitesse et des dimensions du micro réacteur. La même année, les dits auteurs proposent une étude numérique des effets des dimensions, de la géométrie d'une chambre de combustion et les conditions limites sur une micro flamme pré mélangée de

CH₄/air [50]. Les auteurs vont démontrer que la température varie selon les dimensions et la géométrie, laissant entendre que des dimensions plus grandes d'une chambre de combustion permettent d'avoir des températures élevées seulement lorsque les vitesses sont en dessous d'un certain seuil, tout comme une configuration géométrique rectangulaire permet d'avoir des températures plus élevées que celle cylindrique sans condition sur la plage de vitesse. Ils démontrent que dans des conditions $h=0.65 d$, les températures dans les deux configurations étaient proches.

En 2010, Jejurkar, S. Y. et D. P. Mishra, construisent un micro réacteur de configuration simple qui utilise la recirculation de chaleur à l'aide d'un tube rempli d'azote inséré dans le micro réacteur [51]. Cette étude numérique a pour but de caractériser une micro flamme de pré mélange sans l'utilisation d'un catalyseur pour favoriser la combustion. On retiendra de leur étude que la combustion auto entretenue est possible sans utilisation de catalyseur, que la flamme numérique générée a été stabilisée sur les parois et qu'elle présente deux branches avec une épaisseur supérieure à celle de sa valeur caractéristique. Aussi les données de performances recueillies, pour différentes fractions massiques d'entrée et de conductivités thermiques des parois, révèlent-elles des points de fonctionnement utiles pour certaines applications comme la micro propulsion, la micro production d'électricité et le chauffage. La même année Kurdyumov, V. N. et M. Matalon étudient une flamme de pré mélange d'un micro réacteur à recirculation de chaleur. Les réactifs s'écoulent dans un canal dont la configuration contraint les gaz à faire un détour de 180°; l'échange de chaleur est maximal proche de la courbure du canal, la partie restante en amont de l'écoulement étant maintenue adiabatique [52]. Les solutions stables correspondent aux flammes accrochées aux parois de séparation où les échanges de chaleur

intenses se produisent et sont stabilisées par l'écoulement du fluide chaud proche de la paroi.

2.5.2 *Flammes de diffusion*

Les micros flammes de diffusion ont fait l'objet de plusieurs études expérimentales et numériques. Bien que moins abondante, la littérature concernant ce type de combustion nous renseigne sur la structure et les caractéristiques de flamme existante dans ce type de micro structure. En 2005, Miesse, C., R. I. Masel, et *al.* proposent une étude expérimentale des instabilités des flammes de diffusion dans un micro brûleur alumine polycristalline de 0,75mm de profondeur de canal [27]. Les changements observés le sont en fonction du type de combustible, H_2 , CH_4 , C_3H_8 ; le comburant pour toutes les expériences est l'oxygène. Il est à noter que les instabilités apparaissent juste au-dessus des branches d'emmenées des réactifs et se produisent seulement pour les combustibles lourds. Elles n'apparaissent pas dans le cas de l'hydrogène/oxygène où on observe une flamme laminaire continue le long du micro brûleur, quelle que soit la qualité de mélange et si oui ou non elle est proche des conditions d'extinction.

En 2006, Prakash, S., A. Armijo, et *al.* s'attardent sur la structure dynamique des flammes non pré mélangées méthane/oxygène au sein d'une chambre de combustion alumine avec un volume de 130 mm^3 et une profondeur de canal de 0.75 mm, les résultats qu'ils obtiennent, suggèrent que le comportement des flammes est caractéristique des instabilités hydrodynamiques éventuellement stabilisées par les interactions thermique-fluide présentes dans les écoulements réactifs[28, 30]. Les mêmes auteurs en 2007 vont approfondir l'étude de la structure dynamique des micros flammes non pré mélangées. Ils observent que la flamme présente, comme des bords oscillants; cette flamme étant

accompagnée des cycles d'ignition-extinction que précède la formation d'une flamme stable présentant des cellules dans la zone de réaction. Les structures de flamme cellulaire dans tous les cas de figure présentent une structure de flamme triple confinée avec des plis ou des branches riches en fuel et éteintes, tandis que celles qui sont pauvres, restent allumées [29].

En 2010, Gan, Y., J. Cheng, et *al.* présentent une étude expérimentale d'une micro flamme de diffusion de méthanol/air et du champ de température des parois[53], ils utilisent plusieurs tubes de différents diamètres en céramique; les expériences dévoilent trois structures de flamme à des débits différents ainsi que trois régions de combustion séparées. Les résultats montrent que la hauteur et la largeur augmentent proportionnellement avec un débit croissant dans la région stable de la flamme. Pour le même débit les dimensions de la flamme diminuent inversement avec les diamètres intérieurs des tubes. Le champ de température de la paroi extérieure présente une distribution exponentielle et la température de la paroi atteint sa plus grande valeur à la sortie du tube en céramique.

2.5.3 *Le mélange combustible-comburant*

Le mélange des réactifs pour la production d'une flamme est essentiel pour la combustion. Lorsque l'écoulement est turbulent, le mélange des réactifs est favorisé par la turbulence, ce qui n'est pas le cas dans des structures où les dimensions sont petites et où on retrouve un écoulement essentiellement laminaire avec un nombre de Reynold très faible compris entre 100 et 500. Perdant le bénéfice de la turbulence, le mélange dans le cas des micros réacteurs se fait très souvent à l'extérieur de la chambre de combustion par des mélangeurs afin de créer toutes les conditions permettant la combustion, ce qui peut expliquer l'abondance de la littérature et des prototypes sur les flammes pré mélangées

comparativement aux flammes de diffusion. En 2003, Woodfield, P. L., K. Nakabe, *et al.* proposent une étude numérique pour l'amélioration du mélange d'un écoulement laminaire en utilisant plusieurs jets confinés dans une micro chambre de combustion [54], en 2005, Dumand, C. fait une thèse de Doctorat sur le mélange et la combustion dans les petits volumes [55], la même année Hessel, V., H. Löwe, *et al.* font une revue de la littérature des micros systèmes de mélange[56] et en 2007, Lahraichi, S., V. Sabel'nikov, *et al.* proposent une étude expérimentale et numérique du mélange dans le canal de pré mélange et la chambre de combustion d'une micro turbine à gaz[57], tout ceci montre l'intérêt du sujet. On peut retenir de la littérature deux principes utilisés se fondant soit sur l'énergie de pompage, soit sur l'utilisation d'autres énergies externes pour réaliser le mélange, on parle alors de mélange actif et passif. Dans le cas des flammes de diffusion le mélange sera favorisé par la configuration du micro réacteur dont la conception permettra au point de rencontre du fuel et du comburant un mélange passif. Toutefois, soulignons que les problèmes posés par le mélange des réactifs dans les micros systèmes de combustion ont conduit à la conception des géométries complexes de micros réacteurs.

2.6 Conclusion

Les avancées de la micro combustion dans les années 2000 à 2014 sont significatives. On a dépassé la phase de la réalisation des prototypes, on en est aujourd'hui à la réalisation des systèmes manufacturés. Les recherches ont permis de mettre au point des systèmes performants, capables de résister aux conditions de fonctionnement souhaitées. Ceci a été rendu possible grâce aux avancées des techniques de fabrication des MEMS, à la simulation numérique et à l'évolution de la puissance des ordinateurs, des logiciels et des codes de calculs CFD. Les études analytiques, expérimentales et numériques reportées dans l'état de

l'art que nous avons présenté ont permis de mieux comprendre les problèmes posés par cette nouvelle orientation de la recherche et l'utilisation de la combustion pour des besoins d'énergie portative. A la lumière de ce qui précède aucune étude à ce jour ne s'est attardée sur les polluants produits par ces dispositifs. Ce manquement qui peut se justifier par le fait que la préoccupation était de prouver au préalable la faisabilité de la micro combustion, a motivé le sujet de notre recherche et sous-tend la problématique de ces travaux.

Le but recherché par un MPG est de fournir une énergie portative importante avec une autonomie considérable. Cependant, les faibles dimensions de ces micros systèmes impactent sur le rendement énergétique souhaité. Le chapitre 3 présente les modèles de micros réacteurs prototypés, les contraintes à résoudre pour la production, la récupération et la conversion de l'énergie produite en micro combustion.

Chapitre 3 - **Contraintes de production d'énergie en micro combustion**

3.1 Introduction

Les techniques de fabrication des MEMS (Micro Electro Mechanical System) se sont développées au fil des années et on peut citer les plus utilisées de nos jours tels les EDM (Electro Discharge Machining), LBM (Laser Beam Machining), FIBM (Focused Ion Beam Machining) [1]. De plus en plus précises, elles ont conduit à l'utilisation des matériaux nouveaux capables de résister à la production d'une combustion dans un espace de confinement. D'un autre côté, plusieurs systèmes thermodynamiques ont été expérimentés pour convertir l'énergie produite (énergie électrique, énergie mécanique, énergie cinétique), donnant naissance à des prototypes fiables.

L'utilisation de l'énergie produite par les MEMS a pour but d'apporter une énergie importante, portable qui serait à mesure de remplacer les batteries conventionnelles jugées encombrantes et dont l'efficacité serait moindre par rapport aux micros systèmes de production d'énergie. Les MEMS auraient un potentiel énergétique plus important et une autonomie beaucoup plus grande que ceux proposés par les meilleures batteries utilisées.

Dans ce chapitre, nous présenterons les prototypes de micros réacteurs qui font l'objet des études et dont la mise sur pied a été favorisée par la modélisation numérique.

3.2 Modélisation expérimentale et numérique de la micro combustion

La modélisation de la micro combustion est un sujet qui suscite un intérêt scientifique et fait l'objet de plusieurs travaux de recherche actuellement. Elle dépend de plusieurs critères : le type de combustion, le type de réacteur, mais surtout fonction du système thermodynamique à utiliser pour convertir l'énergie thermique produite. Dans la technique des MPGs (Micro Power Generator), la conversion de l'énergie est le but ultime, cependant l'élément essentiel d'un MPG est la micro chambre de combustion. Deux types de configuration simple de micros chambres de combustion sont utilisés, l'une rectangulaire et l'autre cylindrique. Les deux types de micros réacteurs peuvent donner lieu à des flammes de diffusion ou à des flammes pré mélangées, aussi les problèmes posés par l'une ou l'autre flamme seront-ils différents et conduiront-ils à des prototypages différents. Les **tableaux 3.1** et **3.2** présentent les différentes études expérimentales et numériques qui ont été menées jusqu'à ce jour.

Tableau 3.1 Études expérimentales sur les micros réacteurs avec une géométrie simple[2]

Auteurs	Réactifs	Géométrie de la chambre de combustion	Grandeur d'entrée de réactifs	Matériaux utilisés
Zamashchikov	C ₃ H ₈ /Air CH ₄ /Air H ₂ /Air	Tubes cylindriques	D=2,7 mm	Acier inoxydable Céramique Quartz
Mellish et al	CH ₄ /Air	Tubes cylindriques	D=0,5 mm	Acier inoxydable Allumina Quartz
Miesse et al	H ₂ /O ₂ C ₃ H ₈ /O ₂ CH ₄ /O ₂	Réacteur rectangulaire	H=0,75 mm	Acier inoxydable Allumina Quartz
Prakash et al.	CH ₄ /O ₂	Réacteur rectangulaire	H=0,75	Allumina
Maruta et al.	C ₃ H ₈ /Air	Tubes cylindriques	D=2mm	Quartz
Fan et al.	CH ₄ /Air	Micro canal radial	H=0,5-3 mm	Quartz
Boyarko et al.	H ₂ /O ₂	Tubes cylindriques	D=0,4-0,8 mm	Platine
Yang et al.	H ₂ /Air	Tubes cylindriques	D=2mm	Carbure de silicium enduit de platine

Tableau 3.2 Études numériques sur les micros réacteurs avec une géométrie simple[2]

Auteurs	Réactifs	Géométrie de la chambre de combustion	Grandeur d'entrée de réactifs	Mécanisme chimique
Karagiannidis et al	CH ₄ /Air Fuel pauvre	Canal plane	H=1 mm, L=10 mm	Mécanisme détaillé et réactions de surface
Norton et Vlachos	C ₃ H ₈ /Air	Réacteur rectangulaire	H=0,6 mm, L=10 mm	Réaction globale à une étape
Norton et Vlachos	CH ₄ /Air ($\phi=1$)	Reacteur rectangulaire	H=0,6 mm, L=10 mm	Réaction globale à une étape
Hua et al.	H ₂ /Air ($\phi=1$)	Canal cylindrique	D=0,1mm	Mécanisme détaillé
Kaisare et Vlachos	CH ₄ /Air, C ₃ H ₈ /Air ($\phi=1$)	Reacteur rectangulaire	H=0,6 mm, L=10 mm	Réaction globale à une étape
Li et al.	H ₂ /Air ($\phi=0,5$)	Canal cylindrique	D=0,4-0,8 mm	Mécanisme détaillé
Li et al.	CH ₄ /Air ($\phi=0,9$)	Canal cylindrique	D=1-2 mm	Mécanisme détaillé

3.3 Modélisation d'une micro flamme pré mélangée

3.3.1 Caractérisation d'une micro flamme pré mélangée

Au début de la recherche sur les micros réacteurs, leur géométrie était très souvent rectangulaire ou circulaire. En 2002, l'équipe de D.G. Vlachos présente un modèle de micro réacteur (**figure 3.1**) [58], à travers lequel elle analyse les caractéristiques et la stabilité d'une micro flamme pré mélangée méthane/air. En 2004, avec le même prototype de micro réacteur, elle va étudier la stabilité d'une micro flamme propane/air [14]. Le modèle proposé est fort simple et l'étude est faite à l'aide du Logiciel FLUENT 6.0, c'est un tube rectangulaire dont la forme est présentée ci-dessous.

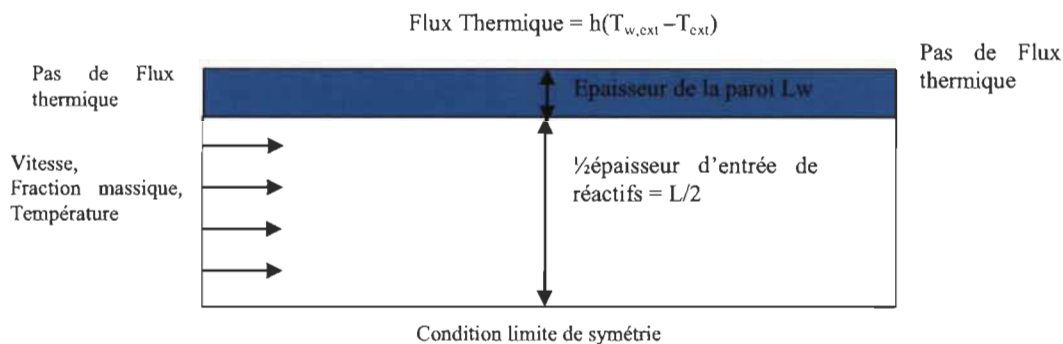


Figure 3.1 Modèle géométrique d'un micro réacteur tubulaire

Les simulations effectuées ont été réalisées dans le but de comprendre les phénomènes qui influencent la stabilité des micros flammes, l'impact des dimensions caractéristiques du micro réacteur sur la flamme et de manière globale la propagation d'une micro flamme. On retrouve les mêmes problèmes dans les micros réacteurs à configuration circulaire.

3.3.2 Résultats des simulations des travaux

L'étude conduite [58] va révéler l'existence de 3 zones distinctes dans le micro réacteur pour un mélange de combustible méthane-air comme le montre la **figure 3.2**, la zone de

préchauffage, celle de combustion et la zone de refroidissement ou post combustion, la grandeur de chaque zone est fonction des conditions opératives :

- La zone I qui constitue la zone de préchauffage du mélange combustible-air entrant dans la chambre de combustion. Cette zone est essentielle pour la stabilisation de la flamme. La température des parois qui doit être aux alentours de 1000°C , est supérieure à celle des réactifs et la conductivité thermique des parois est tout aussi supérieure à celle des molécules formant le mélange combustible comburant.
- La zone II est celle de la combustion proprement dite, avec l'ignition près des parois et une stabilisation de la flamme au centre du micro réacteur.
- La zone III est celle de la post combustion, où la réaction est achevée et les produits de la réaction se refroidissent tout en contribuant au chauffage du réacteur.

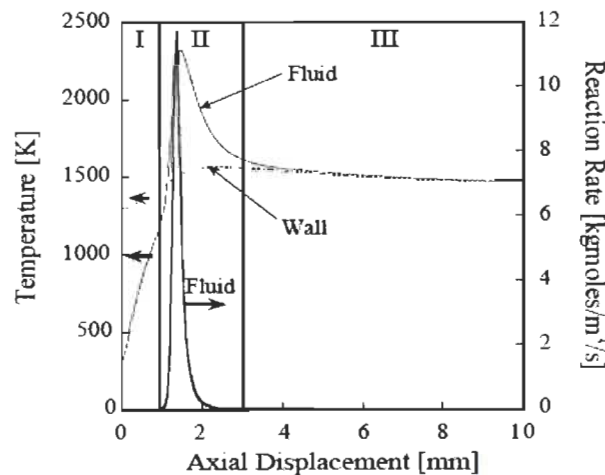


Figure 3.2 Profil de température et du taux de réaction par rapport à l'axe du réacteur [58]

Les mêmes simulations sont effectuées avec toujours un micro réacteur rectangulaire (**figure 3.3**) pour un mélange propane-air dans [14]. Le constat qui en ressort est que la flamme prend naissance au bord des parois avant de se propager horizontalement autour du centre du micro réacteur. Les contours de la flamme sont présentés à la figure suivante :

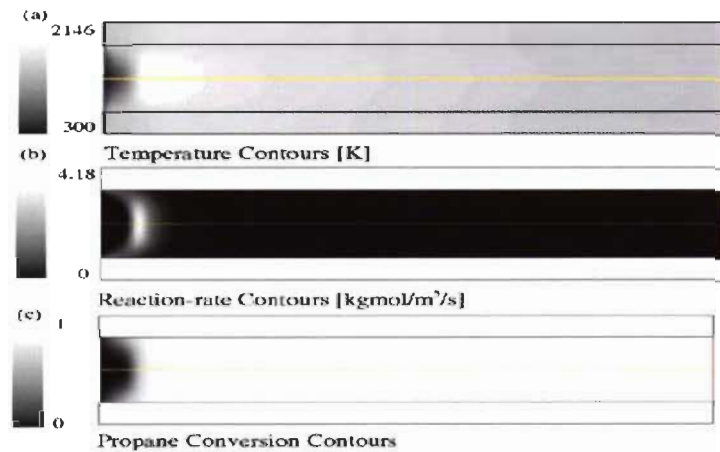


Figure 3.3 Contours de la température, du taux de réaction et de conversion des réactifs dans un micro réacteur de dimensions, gap $600\mu\text{m}$, $L_w=200\mu\text{m}$, épaisseur des parois, vitesse d'entrée des réactifs $v_{\text{inlet}}=0.5\text{m/s}$, $k_w=3(\text{W/m})/\text{K}$, $h=10(\text{W/m}^2)/\text{K}$ [14].

La stabilité de la flamme dans un micro réacteur est sujette à trois phénomènes à savoir, le « flash back », le « blowout » et des extinctions répétitives. Dans le premier cas, la flamme a tendance à se former à l'entrée du réacteur. Dès lors, elle est susceptible de s'éteindre précocement, tandis que dans le deuxième cas, elle se forme à l'extérieur du réacteur, c'est le phénomène d'éruption. Sur la **figure 3.4** ci-dessous est représenté le taux de réaction dans les trois cas de figure. Il apparaît que, pour une flamme stable le taux de réaction se forme à l'entrée du réaction, alors qu'il est déplacé vers le milieu du réacteur lorsque la flamme subit un « blowout » ou un extinction.

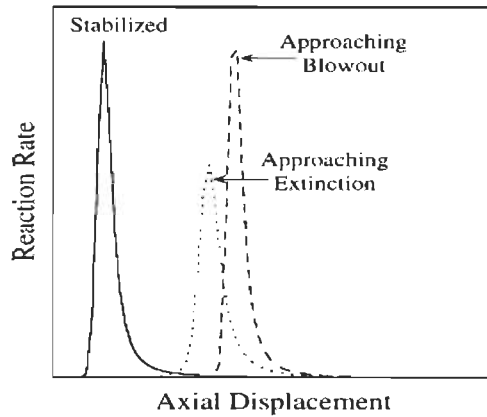


Figure 3.4 Taux de réaction dans les conditions de stabilité, d’extinction et d’éruption de la flamme [14].

Les auteurs [14], parviendront à la conclusion que dans les deux cas d’extinction et d’éruption de la flamme, sa stabilité est fonction de la chaleur transmise en amont de la zone de réaction aux réactifs entrant, de la différence entre le temps de résidence τ_R et le temps chimique τ_C , mais aussi du type de combustible.

Pour bien comprendre le phénomène de stabilité de la flamme dans un micro réacteur, il faut comprendre le mécanisme d’extinction et d’éruption de la flamme qui est fort bien décrit dans [14]. Lorsque l’extinction se produit, la zone de réaction se décale légèrement en amont du micro réacteur tout en s’élargissant; on a une forte perte de chaleur à travers les parois vers l’environnement externe, ce qui engendre l’extinction de la flamme.

En ce qui concerne l’éruption de la flamme, la zone de réaction est fortement élargie en aval du micro réacteur et la chaleur perdue est importante dans les produits de réaction, la combustion tend à se poursuivre à l’extérieur de la chambre de combustion. Dans l’ensemble, la micro combustion du mélange méthane air est presque la même que celle du propane air, bien qu’il soit mis en relief que la flamme du mélange propane air soit plus robuste, ce qui se justifie par le fait que la température d’ignition soit moins élevée que

celle du méthane air, ceci permettant à la flamme de vite prendre corps et donc d'être plus résistante à l'extinction et à l'éruption.

3.3.3 Influence de la conductivité des parois

La conductivité thermique des parois du microréacteur joue un rôle essentiel dans la stabilisation de la micro flamme, lorsqu'elle est faible, elle ne permet pas un échange de chaleur à l'intérieur des parois et limite ainsi le préchauffage des réactifs dans la zone I, ce qui sera la cause d'un retard dans l'ignition mais aussi à l'apparition du phénomène d'éruption de la flamme. En outre, elle crée des points chauds à l'intérieur des parois, ce qui à la longue provoquera une fissuration de celles-ci.

A l'opposé, une conductivité thermique élevée des parois fait qu'elle soit quasiment isothermique et donne lieu à de faibles températures comme on peut le voir sur la **figure 3.5**, ce qui induit une répartition de la chaleur et provoque une extinction spatiale de la flamme. La conductivité thermique optimale des parois d'un micro réacteur est évaluée à environ 3-5 W/m/K [58].

L'influence de la conductivité thermique des parois du microréacteur est liée à celle des autres paramètres du microréacteur à savoir l'épaisseur et les dimensions d'entrée du micro réacteur [59, 60]. L'enjeu est le préchauffage des réactifs qui déterminera la zone d'ignition. Si l'ignition a lieu tard, c'est-à-dire dans la seconde moitié du micro réacteur, la flamme sera instable.

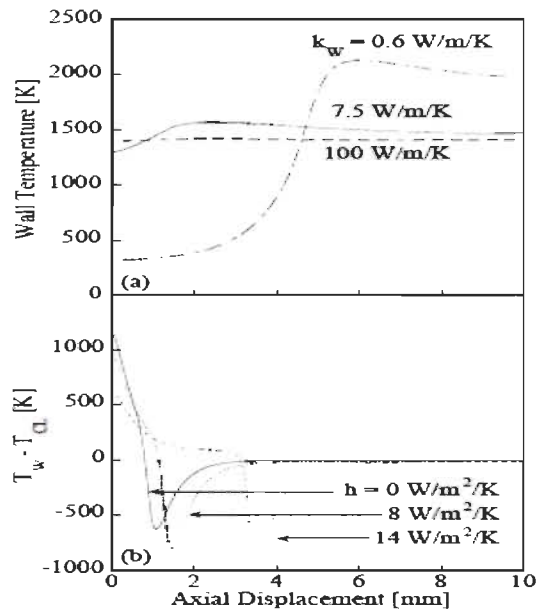


Figure 3.5 Variation de la température de paroi par rapport à la conductivité thermique, variation de l'écart de température fluide et paroi interne du micro réacteur par rapport au coefficient de convection [58]

3.3.4 Influence du débit du mélange réactif sur la stabilité de la micro flamme

Le débit du mélange réactif, tout comme la conductivité thermique affecte la stabilité de la flamme, un débit élevé occasionne une baisse du transfert de chaleur sur les parois d'entrée du réacteur, d'où une baisse de la chaleur de préchauffage ce qui provoquera l'éruption de la flamme, d'un autre côté un débit faible sera source d'une augmentation de la perte de chaleur à travers les parois et donc une diminution de la chaleur capable de générer l'auto ignition.

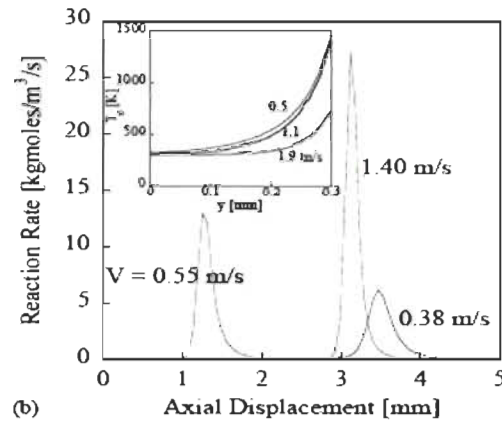


Figure 3.6 Variation du taux de réaction chimique par rapport à la vitesse[22]

L'augmentation de la vitesse d'entrée des réactifs (**Figure 3.6**) tout comme sa baisse est néfaste pour la stabilité de la micro flamme; une augmentation de la vitesse des réactifs entraîne une baisse du temps de résidence des réactifs, ce qui est susceptible de provoquer une extinction de la flamme. En outre, une baisse de la vitesse signifie que le temps de résidence est supérieur au parcours des réactifs, en d'autres termes le taux de réaction est faible et donc une production insuffisante de chaleur capable d'entraîner un préchauffage en amont des réactifs, d'où un facteur d'extinction de la flamme. La vitesse moyenne se situe entre 0,3 et 0,5 m/s [14] et une faible zone de stabilité est développée (**figure 3.7**).

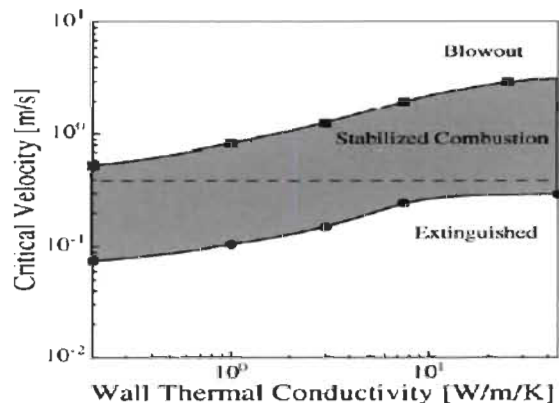


Figure 3.7 Zone de stabilité en micro combustion par rapport aux paramètres de conductivité thermique et de vitesse [22]

3.3.5 Influence des dimensions de la paroi du microréacteur

Les dimensions des parois du microréacteur ont une influence certaine sur la stabilité de la flamme, que ce soit l'épaisseur de la paroi, les dimensions d'entrée des réactifs ou fente, la longueur du parcours des réactifs [61]. Les simulations effectuées montrent qu'une épaisseur faible des parois environ 50 μm provoque un large gradient de température axiale ce qui engendre des points chauds à l'intérieur des parois et augmente les risques de leur détérioration rapide. Par contre des parois d'une épaisseur plus grande, estimée entre 200-600 μm , donnent lieu à des températures basses, mais à une meilleure uniformisation de celles-ci dans la chambre de combustion [58].

Dans les années 1817, Davy va estimer à 1-2 mm les dimensions d'entrée en dessous desquelles une flamme ne peut être générée; cependant ces dimensions sont de plus en plus faibles et varient entre 600 et 150 μm . L'étude de tous les paramètres analysés se fait en régime stationnaire avec une bonne approximation des conditions réelles, seulement à l'approche de la zone d'extinction de la flamme, la solution devient instable à cause des pertes importantes de chaleur pariétale, donnant lieu à un comportement périodique de la solution.

En 2007, Vlachos D.G. et *al.* approfondissent l'analyse de l'influence des dimensions du microréacteur sur la stabilité de la flamme et il en ressort [22] que le coefficient de convection à l'intérieur du micro réacteur est linéairement dépendant de l'inverse de la dimension de la fente d'entrée. Rétrécir la fente d'entrée du micro réacteur revient à augmenter la recirculation de chaleur dans le micro réacteur, mais aussi les pertes de chaleur pariétales comme illustré à la **figure 3.8**, ce qui provoquerait l'extinction de la

flamme; tandis qu'augmenter les dimensions induirait l'éruption de la flamme due à un faible taux de recirculation de la chaleur.

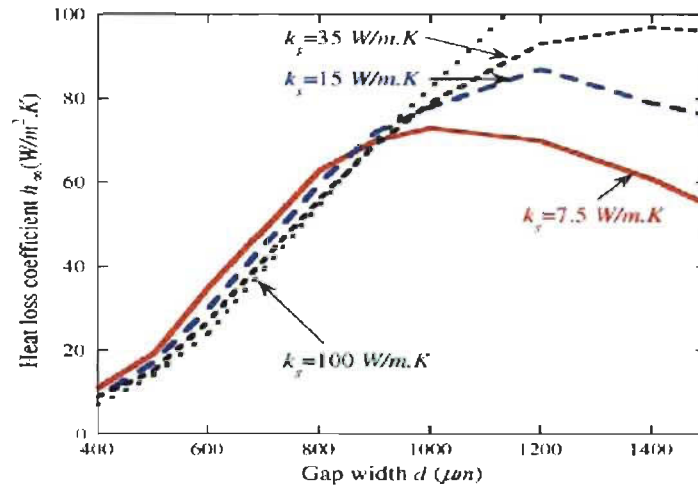


Figure 3.8 Variation du coefficient de transfert de chaleur à travers les parois par rapport à la fente d'entrée [22]

La structure solide du réacteur affecte à la fois le transfert de chaleur en amont et la perte de chaleur à travers les parois. L'épaisseur des parois affecte le transfert de chaleur axial en amont et donc la stabilité de la flamme (figure 3.9).

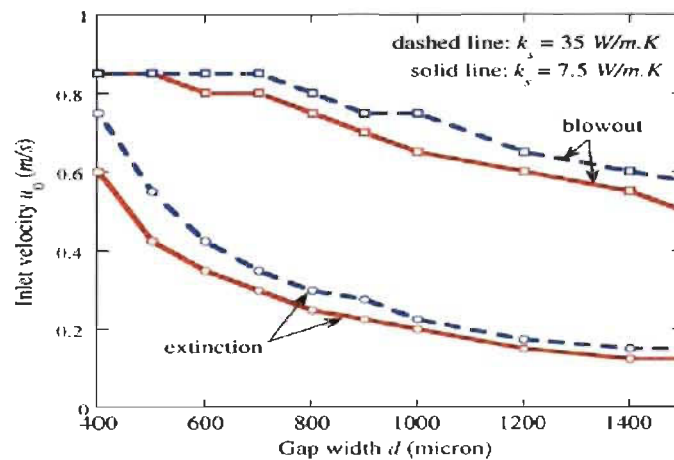


Figure 3.9 Variation de la vitesse d'entrée des réactifs par rapport à la grandeur de la fente d'entrée [22]

Si l'augmentation de la longueur du réacteur permet d'augmenter le temps de résidence des réactifs, elle n'améliore pas toujours la stabilité de la flamme. Par contre, elle entraîne l'augmentation de perte de chaleur à travers les parois, ce qui nécessite donc un bon compromis entre les grandeurs de la fente, la longueur du réacteur et l'épaisseur des parois.

3.3.6 Influence du type de combustible sur la stabilité de la micro flamme de combustion

L'analyse des flammes générées dans une micro chambre de combustion permet de comprendre à travers des simulations visant à étudier le comportement des flammes des mélanges méthane air et propane air, que la micro flamme du mélange propane air est plus robuste que celle du méthane air (**figure 3.10**), ce qui se justifie par l'action des paramètres constants du taux de réaction qui impactent la stabilité de la flamme et sa localisation.

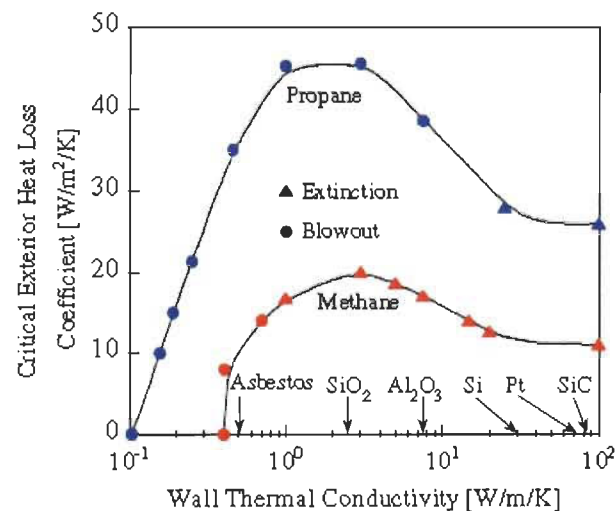


Figure 3.10 Quantité de chaleur perdue par rapport à chaque type de réactifs [14]

Pourquoi la flamme du mélange propane-air est-elle plus robuste que celle du mélange méthane-air ? Ceci peut se justifier par le fait que le propane a un pouvoir calorifique plus

important que celui du méthane, mais sa température d'ignition qui se situe aux alentours de 920°C est largement moins élevée que celle du méthane qui est de 1220°C (**figure 3.11**), ce qui fait que la plage de stabilité du mélange propane-air soit beaucoup plus grande [22].

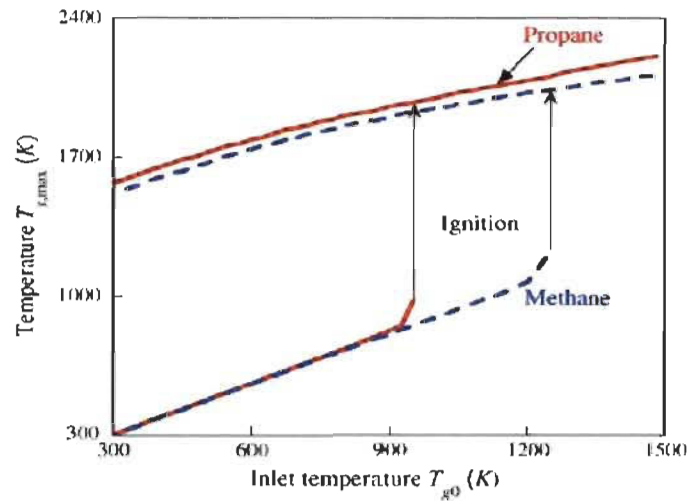


Figure 3.11 Température des parois par rapport à celle des réactifs [12]

De manière générale, l'extinction des flammes de propane et de méthane ont la même tendance; elle intervient pour de faibles coefficients de perte de chaleur à travers les parois du micro réacteur, mais en ce qui concerne l'éruption de flamme, elle se produit pour des faibles vitesses d'entrée de réactifs, beaucoup plus prononcée pour la flamme de méthane que celle de propane.

En 2003, Li Z.W., Chou S.K, Shu C., Xue H., Yang W.M. et *al.* vont proposer un micro réacteur cylindrique en acier inoxydable, plusieurs diamètres (2,2 à 3 mm) de tubes seront testés pour la production d'électricité à travers un système photovoltaïque [11]; ils arriveront à la conclusion qu'il est possible de maintenir une flamme de diffusion dans un

diamètre aussi petit à condition d'avoir des vitesses des réactifs comprises entre 2 m/s et 12 m/s. Il est tout de même important de souligner que dans de tels systèmes, le maximum de perte de chaleur à travers les parois est désiré. En 2005, ces auteurs tablèrent sur l'influence du diamètre du tube sur l'efficacité du micro réacteur [46]; ils se rendent compte que l'efficacité du microréacteur pour une application TPV (Thermo photovoltaïque) est meilleure avec un diamètre de 2mm.

Toujours en 2005, Jinsong, Meng Wu et Kurichi Kumar publient un article à deux parties très intéressant sur la simulation numérique de la micro combustion de l'hydrogène-air [18, 19], ils simulent les caractéristiques d'une flamme dans des tubes de diamètres variant de 0.4, 0.2, 0.1 et 0.05 mm avec des paramètres fixes tels que le ratio du diamètre de la chambre de combustion sur le diamètre d'entrée égale à 2, ainsi que celui de la longueur du microréacteur sur le diamètre d'entrée égale à 15,5. La **figure 3.12** montre un des prototypes de micro réacteur qu'ils utilisent.

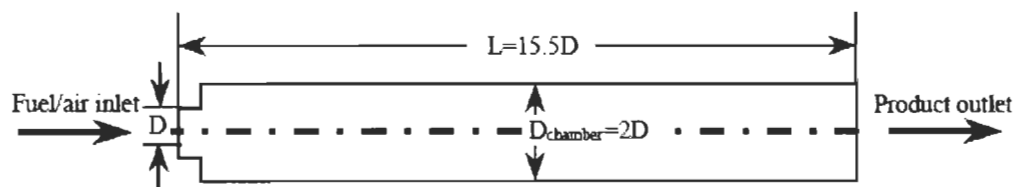


Figure 3.12 Micro réacteur circulaire avec un diamètre d'entrée différent de celui de la chambre de combustion [18]

Leur étude vise à expliciter les phénomènes d'extinction et d'éruption qui participent à l'instabilité de la combustion dans un micro réacteur. Il ressort clairement de leur étude que les radicaux libres, longtemps suspectés responsables des difficultés d'un auto maintien de la flamme dans un espace réduit, ne jouent pas un rôle majeur dans l'extinction de la flamme. Pour parvenir à cette conclusion, ils vont faire des simulations en considérant les

parois de la micro chambre adiabatiques, ceci dans le but d'isoler le facteur de perte de chaleur à travers les parois. En outre, ces auteurs arrivent aux mêmes conclusions évoquées plus haut à savoir que la réduction des dimensions du micro réacteur conduit à l'extinction complète de la flamme, ce qui a été observé dans le cas du micro réacteur de 0,05 mm.

En 2009, ils étudient également les effets des paramètres géométriques du microréacteur et des conditions limites sur la température de la flamme du pré mélange méthane air [50]; ils mettent en exergue la différence observée entre le mélange hydrogène air et celui du méthane air concernant tout d'abord les vitesses d'entrée des réactifs, qui sont de l'ordre de 1 à 8 m/s pour le premier et de 0,3 à 0,5 m/s pour le deuxième, et observent que l'augmentation de vitesse (1-8 m/s) dans un réacteur de petites dimensions hydrogène-air conduit à des températures basses, alors que dans les mêmes conditions géométriques de réacteur, la diminution de vitesse (0,3-0,5m/s et un peu plus) méthane air conduit à des températures élevées. Il ressort aussi de cette étude que la configuration géométrique des micros réacteurs affecte la température de la flamme, les micros réacteurs à forme rectangulaire génèrent des températures bien plus élevées que celles qu'on puisse avoir dans des micros réacteurs circulaires pour les mêmes dimensions.

Il faut relever qu'en 2010, Yunhua Gan, Jing Cheng et Zeliang Yang proposent une étude de la combustion d'un hydrocarbure liquide, éthanol dans différents tubes cylindriques [53]; ils détermineront dans les flammes formées, trois structures de micro flamme, à savoir la structure de l'extinction de la flamme, celle de la stabilité et celle explosive.

3.4 Modélisation de la micro combustion non pré mélangée

Les recherches sur la micro combustion pré mélangée sont beaucoup plus abondantes, parce qu'elle offre l'avantage de sa mise en œuvre et la simplicité dans la conception des micros réacteurs. L'équipe de recherche de Shannon et *al.* est presque la seule dans la littérature qui axe ses recherches sur les flammes non pré mélangées, un prototype de micro réacteur a été fabriqué et au fil des années, plusieurs recherches sont effectuées visant à améliorer la production de la micro flamme mais aussi sa stabilité.

3.4.1 Modèle de micro réacteur pour une flamme non pré-mélangée

En 2004, Shannon et *al.* proposent une forme de micro réacteur (**figure 3.13**) pour une combustion non pré mélangée [13], ils font une étude expérimentale visant à déterminer les matériaux susceptibles de résister le mieux pour la propagation des micros flammes à des températures avoisinant les 1000°C.

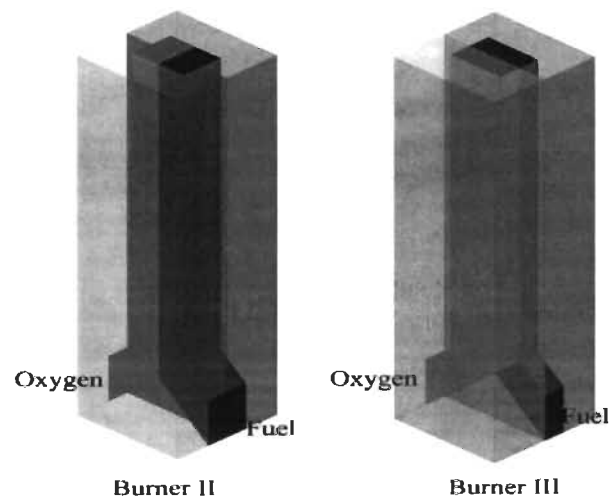


Figure 3.13 Modèle de micro réacteur pour une combustion non pré mélangée [13]

Les matériaux tels que l'alumine, l'acier inoxydable sont recommandés. Ils étudient aussi le phénomène d'extinction de la flamme, l'influence des parois par le transfert de chaleur et par son action sur les radicaux, tout comme ils étudieront en 2005 les phénomènes transitoires qui se produisent après l'ignition et avant que la micro flamme soit stabilisée [27], toutes ces études sont expérimentales. En 2009, ils proposent une étude fort intéressante sur l'étude des conditions limites sur une micro flamme stable [24]; cette étude est numérique et en 3D et vise à comparer les prédictions des résultats par les simulations et ceux obtenus expérimentalement. Le micro réacteur amélioré est fabriqué d'une paroi vitrée qui permet de voir la formation de la flamme stable tel que représenté à **figure 3.14**.

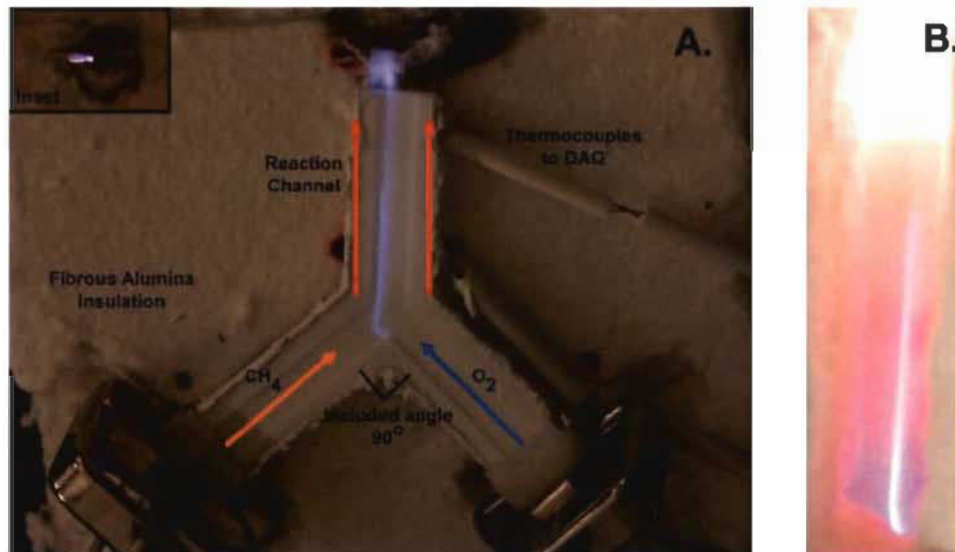


Figure 3.14 Vue d'ensemble de la micro flamme non pré mélangée avec un débit global de 300 sccm (100 CH₄ et 200 O₂) [24].

3.4.2 Modèle analytique utilisé

Dans le cadre de leur étude [24], Shannon et *al.* mettent en évidence l'importance du rayonnement dans l'étude de la stabilité de la micro flamme, alors que dans plusieurs

études le rayonnement a toujours été négligé. Si les équations utilisées sont les mêmes (équations de continuité, de conservation et de transport), il est à noter que lors des travaux de simulation la seule différence va intervenir au moment de considérer l'entrée des réactifs; dans une flamme de diffusion le combustible sera seul à être considéré dans l'une des branches d'entrée, alors que de l'autre côté ce sera le comburant.

Les résultats des simulations effectuées avec le logiciel Fluent, montrent que le rayonnement souvent négligé joue un rôle important dans la stabilité de la flamme. De plus la température des parois en tenant compte du rayonnement est plus proche de la réalité, elle est d'environ 800 K et est bien uniforme par rapport à lorsque les parois sont considérées adiabatiques avec des températures avoisinant 1200K à l'entrée du réacteur et 1500K à la sortie. Il est à noter qu'au cours de ces expériences visant à ressortir l'influence des conditions limites sur la stabilité de la flamme, plusieurs paramètres tels que le débit, la richesse du mélange et la température des parois ont été testés. Le débit au cours des simulations a été fixé à 300 sccm (standard cubic centimeters per minute), la température la plus élevée obtenue à l'entrée du micro réacteur était de 3000 K dans les conditions quasi stœchiométriques (200 sccm pour le O_2 et 100 sccm pour le CH_4), ce qui est inférieur à la température adiabatique d'un tel mélange (3054 K).

3.5 Amélioration des micros réacteurs

La stabilisation des micros flammes pré mélangées est fonction de la maîtrise à la fois de la perte de chaleur à travers les parois, mais aussi et surtout du pré chauffage des réactifs à l'entrée du micro réacteur. Dans ce but, plusieurs micros réacteurs avec des formes simples ou compliquées ont été conçus avec un impact sur l'extinction et sur l'éruption de

flamme plus ou moins important. Ci-contre quelques améliorations qui ont été apportées par rapport aux micros réacteurs présentés ci-dessus.

3.5.1 Micros réacteurs à inversion de circulation de chaleur

En 2007, Vlachos D.G . et *al.* dans l'optique d'étendre la zone de stabilité d'une micro flamme étudient l'impact d'un micro réacteur à inversion de cycle périodique RF (Reverse Flow) sur la stabilité de la flamme. Ce modèle présenté ci-dessous (**Figure 3.15**) permet le passage dans un intervalle de temps des réactifs dans un sens; afin d'exploiter la chaleur récupérée par les parois lors de l'inversion du cycle, les réactifs froids qui entreront dans l'autre sens seront chauffés par la chaleur des parois ce qui aura pour objectifs d'améliorer l'ignition et d'empêcher l'éruption de la flamme.

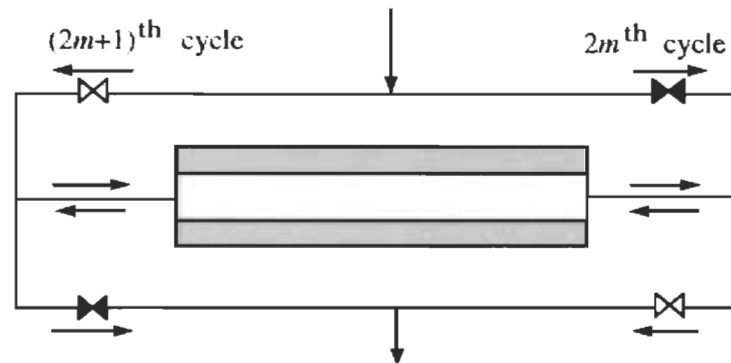


Figure 3.15 Modèle du micro réacteur à inversion de cycle [21]

Les simulations effectuées montreront que la méthode de RF n'a pas d'impact majeur sur le mécanisme d'extinction de la micro flamme, en revanche, elle augmente les limites de la zone d'éruption de la flamme dans les cas où les fréquences d'inversion des cycles sont élevées [21].

3.5.2 Micros réacteurs à recirculation de chaleur à contre-courant

Les études précédemment menées par Vlachos D.G. et *al.* ont montré que la stabilité de la flamme était menacée par les phénomènes d'extinction et d'éruption de la flamme, la cause principale étant le préchauffage des réactifs. Pour pallier cela, ils proposent un autre modèle de micro réacteur à recirculation de chaleur à contre-courant

HRR (Heat Recirculation Reactor), ce modèle représenté par les **figures 3.16 et 3.17** permet de récupérer la chaleur évacuée dans les produits de combustion pour chauffer les réactifs entrants froids. Avant ça, J.Vican et *al.* avaient déjà mis au point un microréacteur dénommé « Swiss roll », à excès d'enthalpie qui est en fait un système de recirculation de chaleur à contrecourant [9, 48].

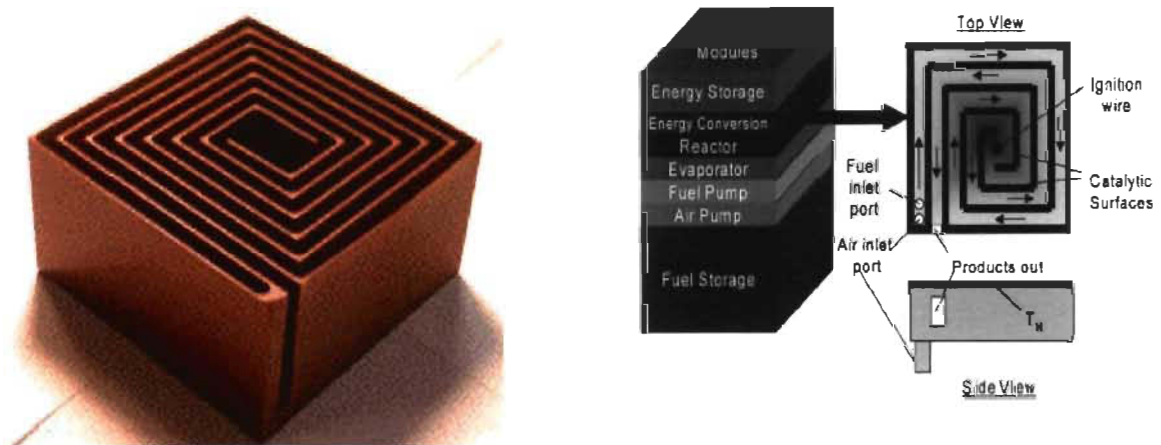


Figure 3.16 Modèle du micro réacteur Swiss roll[9]

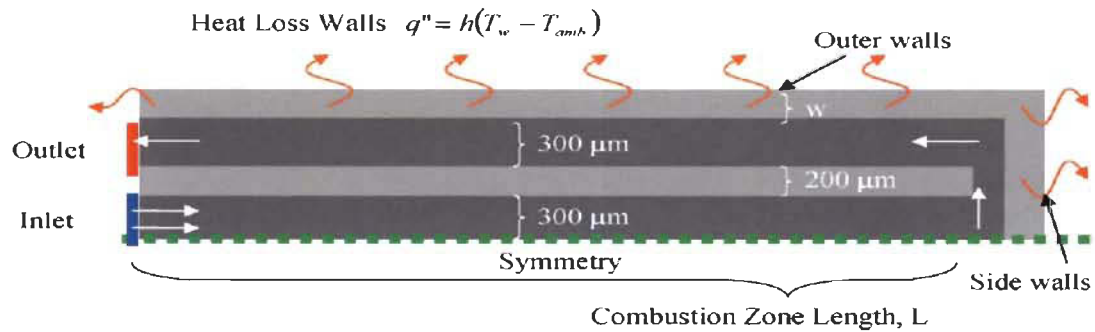


Figure 3.17 Modèle du micro réacteur HRR [23]

Ce modèle est simulé avec le Logiciel Fluent qui a aussi servi pour les simulations des modèles préalablement étudiés, les résultats obtenus étant comparés à ceux présentés ci-dessus.

Il en ressort que la stabilité de la flamme dans le cas d'un modèle de réacteur HRR où la conductivité thermique des parois est élevée et la vitesse d'entrée des réactifs faible, n'est pas différente de celle observée dans un modèle simple circulation. Si la recirculation des produits de combustion à contre courant permet un bon réchauffage des réactifs pour une ignition du mélange, il engendre aussi une perte de chaleur importante à travers les parois.

Cependant dans le cas des parois du HRR à faible conductivité thermique et de vitesse d'entrée des réactifs élevée, la flamme dans le micro réacteur HRR est beaucoup plus stable que son homologue à simple circulation. Mais la plus value de la recirculation à contre - courant des produits de combustion est surtout perçue dans le mécanisme d'éruption de la flamme dont la zone limite est augmentée.

3.5.3 Micro réacteur catalytique

En 2009, Vlachos D.G. et *al.* se proposent d'étudier l'impact d'un catalyseur dans les micro réacteurs à simple circulation de réactif SCR (Single Channel Reactor) et à recirculation à contre-courant des réactifs HRR (Heat Recirculation Reactor). Les modèles utilisés sont ceux précédemment présentés dans lesquels on a juste ajouté du platine Pt comme catalyseur[41] comme on peut le voir sur la **figure 3.18**.

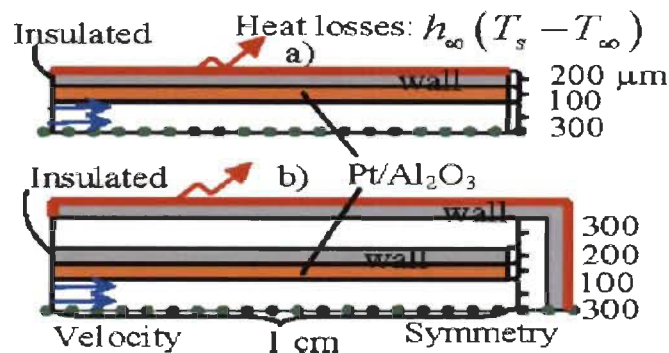


Figure 3.18 Modèle de micro réacteur Catalytique SCR et HRR [41]

Les simulations effectuées vont montrer que le comportement de la stabilité ne change pas pour une conductivité thermique élevée des parois dans le cas des réacteurs catalytiques, mais lorsque la conductivité thermique des parois est plus faible les limites de stabilité de la flamme sont améliorées pour un HRR catalytique.

3.5.4 Micro réacteur à chauffage des parois

En 2010, Jejurkar S.Y. et Mishra D.P. proposent un micro réacteur annulaire à paroi multiple [51] capable d'améliorer considérablement la stabilité de la micro flamme. Ils utilisent comme combustible l'hydrogène qui possède un pouvoir calorifique plus

important que les hydrocarbures précédemment utilisés, mais aussi une marge d'inflammabilité plus grande.

Le micro réacteur est constitué de trois tubes, dont un tube dans lequel on a emmagasiné de l'Azote, qui permettra lors de la combustion de conserver de la chaleur qui servira au pré chauffage des réactifs entrant, d'un autre tube vide qui est la paroi extérieure tel que schématisé à la **figure 3.19**. Entre ces deux tubes on a inséré un tube dans lequel se déroulera la combustion.

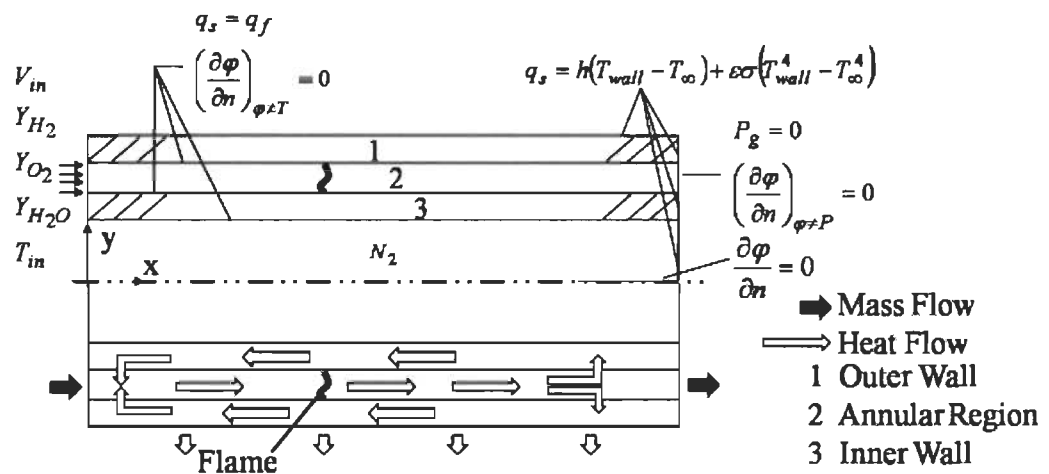


Figure 3.19 Modèle de micro réacteur annulaire [51]

Les simulations effectuées, montrent que la stabilité de la flamme s'en trouve fortement améliorée et la zone de réaction élargie, quoique sans impact sur le problème de perte de chaleur à travers les parois.

3.6 Conversion et utilisation de l'énergie produite dans les micros réacteurs

L'utilisation et la conversion de l'énergie produite à travers les micros réacteurs font l'objet de plusieurs recherches[1-4, 62], et de façon générale les méthodes employées dans

ce sens sur le plan macroscopique sont quasiment les mêmes que sur le plan microscopique avec des rendements bien plus faibles, mais suffisamment élevés pour la production d'énergie nécessaire aux besoins des dispositifs portatifs; elles peuvent se faire de plusieurs façons, d'une part, par l'utilisation de l'énergie thermique échangée et d'autre part par la conversion de l'énergie chimique dégagée.

La figure suivante présente les différentes applications de la micro combustion.

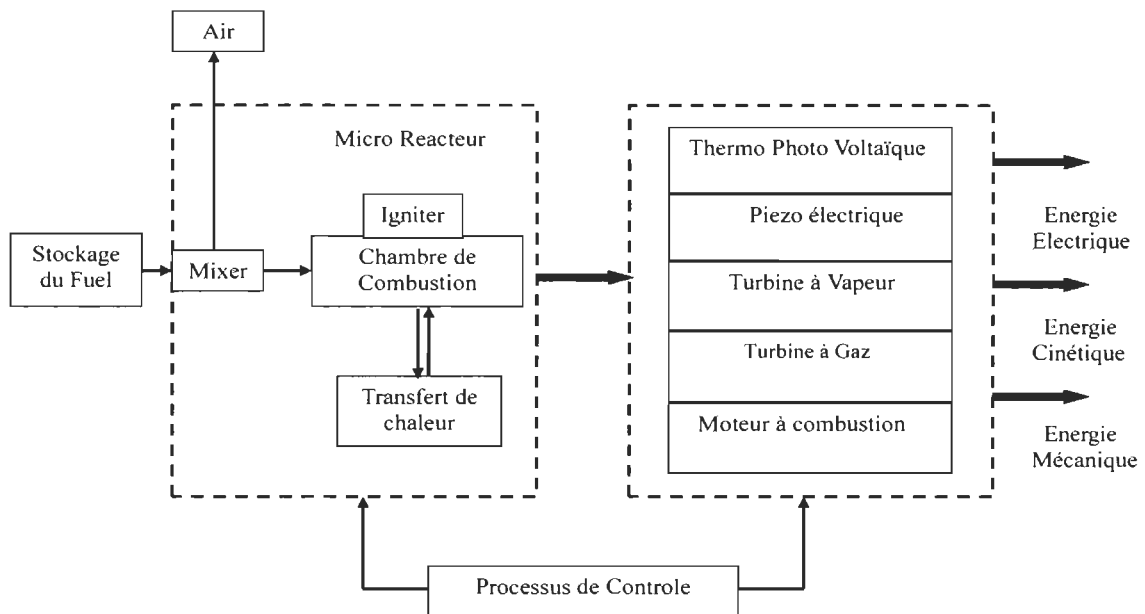


Figure 3.20 Application de la micro combustion

L'utilisation de l'énergie thermique se fait par des dispositifs piézoélectriques ou thermoélectriques[63], plusieurs projets dans ce sens sont menés malgré de faibles rendements de ces dispositifs. Les micros réformateurs pour la production de l'hydrogène comme combustible utilisé pour les piles à combustible permettent aussi l'utilisation de l'énergie produite dans les micro réacteurs; il en est de même des systèmes photovoltaïques où les parois, à travers lesquelles s'effectue l'échange de chaleur, chauffent les cellules photovoltaïques pour la production d'électricité et dans les machines frigorifiques à

absorption où elles sont utilisées comme éléments chauffants dans le bouilleur. Des micros réacteurs en 3D et en 2D, générateurs thermoélectriques de type swiss-roll ont permis la production d'électricité [1, 9, 64] d'une puissance estimée entre 100 mW et 500 mW. Les recherches effectuées par Yang, W. M., S. K. Chou, et *al.* ont permis de mettre au point un micro système thermo photovoltaïque permettant de délivrer une puissance électrique de 3 à 10 W [11, 65] et plusieurs recherches pour améliorer le système sont toujours menées[66-68].

L'énergie chimique produite dans les micros chambres de combustion est aussi convertie à travers plusieurs types de systèmes; ainsi on utilise des micros turbines à gaz, les micro turbines à vapeur (pas très répandues), les micros moteurs ou les micros fusées. Dans les laboratoires de MIT (USA), des micros turbines de 300 mm³ ont été conçues pour produire une puissance électrique de 10 à 20 W[1]. Plusieurs micros turbines à gaz font l'objet d'étude pour une amélioration des performances de tels dispositifs [12, 57, 69-78]. Fréchette, L. G., C. Lee, et *al.* conçoivent une turbine à vapeur pouvant décrire un cycle de Rankine [79], aussi dans le laboratoire de combustion de l'Université de Berkeley un micro moteur rotatif de type Wankel a-t-il été expérimenté pour développer une puissance de quelques mW. L'énergie produite dans des micros chambres de combustion est aussi utilisée pour la propulsion, les drones ou les micros fusées, dispositifs dont les performances se sont améliorées avec le développement des MPGs [80-82].

Les sections suivantes donnent une brève présentation de quelques prototypes par rapport à chaque mécanisme de production d'énergie.

3.6.1 Utilisation de la micro chambre de combustion dans la conversion d'énergie

Toutes les micros chambres de combustion présentées dans les paragraphes précédents ne le sont pas simplement pour des fins de recherche; elles sont utilisées dans des applications de conversion d'énergie. Par exemple le micro réacteur rectangulaire de la **figure 3.21** proposé D.G. Vlachos [58] et qui a fait l'objet de plusieurs autres publications est utilisé dans des systèmes thermoélectriques[4].

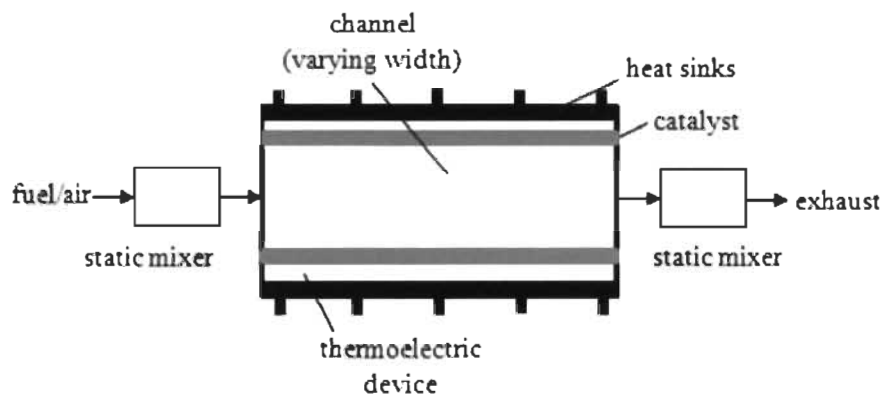


Figure 3.21 Micro réacteur rectangulaire utilisé dans un système de conversion d'énergie thermoélectrique[4].

De même, le modèle en Y proposé par M. Shannon [13] pour une flamme de diffusion (**figure 3.22**), est utilisé dans des systèmes de propulsion[4].

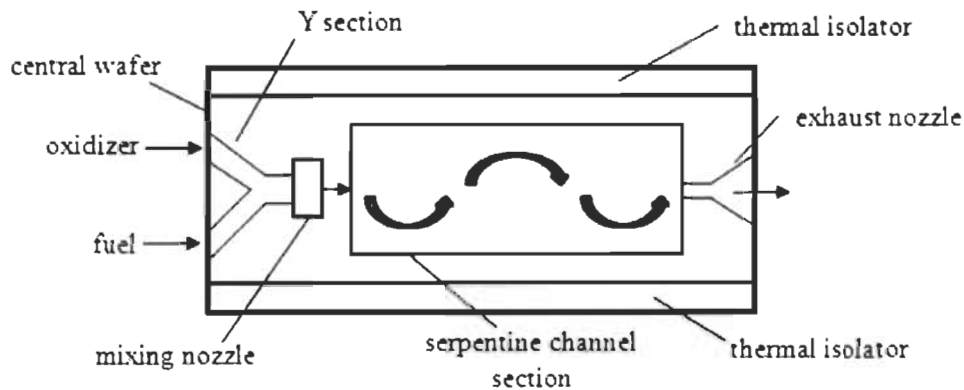


Figure 3.22 Utilisation du micro réacteur Y dans un système de propulsion[4]

3.6.2 Micro production d'énergie électrique par le procédé thermo photovoltaïque

La production d'énergie par le procédé thermo photovoltaïque est un des procédés de micro production d'énergie électrique avec un dispositif de conversion directe. Le principe consiste à l'utilisation des cellules photovoltaïques pour convertir la chaleur de radiation produite par la combustion d'un combustible dans un micro réacteur dont les parois sont utilisées comme émetteur. Le dispositif est constitué de cellules PV(Photovoltaïque) représenté par la **figure 3.23**, d'un micro réacteur avec un mélange de réactifs de H_2 /air avec des parois en SiC et des ailettes de refroidissement, le tout dans un volume de $0,1 \text{ cm}^3$ pour une production d'énergie comprise entre 0,2 et 2,5 W [2, 11, 83, 84].

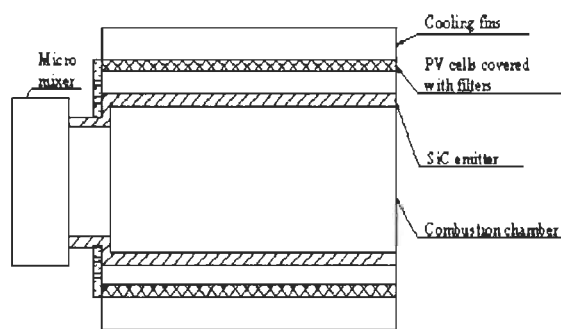


Figure 3.23 Modèle géométrique d'un MRTPV et son prototype[2]

3.6.3 Micro production d'énergie électrique par le procédé thermo électrique

La micro combustion a permis l'amélioration du rendement des systèmes thermo électriques pour la production d'électricité à partir de l'effet Peltier. Le micro réacteur ici est utilisé comme source de chaleur pour produire de l'énergie électrique en exploitant les capacités thermoélectriques des matériaux tels que l'alliage de Bismuth et de tellure (Bi_2Te_3), et comme source froide un micro refroidisseur avec pas moins de 100 couches n-p connectés électriquement en série et en parallèle thermiquement entre deux substrats [2, 4].

La micro thermo électricité a fait l'objet de plusieurs études expérimentales et numériques, permettant la production de dispositifs de puissance d'environ 1 W. En 2006 ZHANG Yong-sheng et *al.* proposent un dispositif thermo électrique (**figure 3.24**) constitué d'une micro chambre de combustion constitué de Quartz et des matériaux thermoélectriques en Bi_2Te_3 . L'énergie produite est de 368 mW pour un voltage de 1,84 V[63, 85].

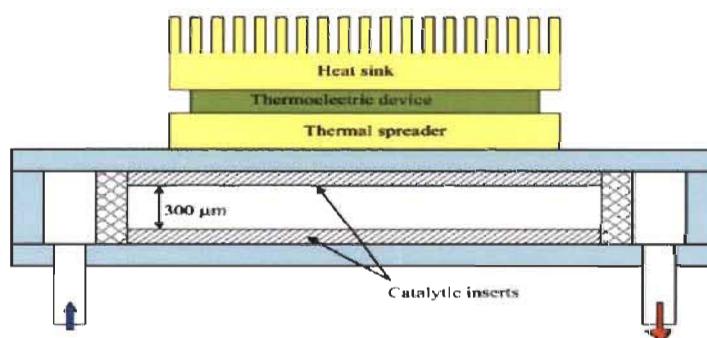


Figure 3.24 Modèle géométrique d'un système T.E[62]

3.6.4 Micro production d'énergie de propulsion

La micro combustion est aujourd'hui un des principaux atouts dans l'industrie aérospatiale, particulièrement dans la mise en orbite des micros satellites, la propulsion des micros faisceaux spatiaux, le pilotage (guidage) des avions de très petites tailles dont les drones[2]. Les **figures 3.25 et 3.26** présentent une micro turbine à gaz utilisée dans de petits avions et un micro satellite. La combustion est utilisée pour la propulsion et plusieurs prototypes sont aujourd'hui fonctionnels et commercialisés. Plusieurs types de combustibles peuvent être utilisés pour cette application, les combustibles liquides ou gazeux.



Figure 3.25 Modèle de micro propulseur[86]



Figure 3.26 Micro satellite[86]

L'une des applications de la micro production d'énergie de propulsion est la fabrication des micros turbines à gaz. Alan Epstein de l'Institut Technologique de Massachusetts (MIT) est le premier laboratoire au monde à avoir mis sur pied un prototype de micro turbine à gaz[6, 87], qui a connu plusieurs améliorations. La **figure 3.27** présente un des premiers dispositifs mis sur pied par son équipe. Le diamètre du compresseur centrifuge et du rotor radial de la turbine est respectivement de 10 et 6 mm, ceci pour être en mesure de produire une énergie de l'ordre de 10-50 W.

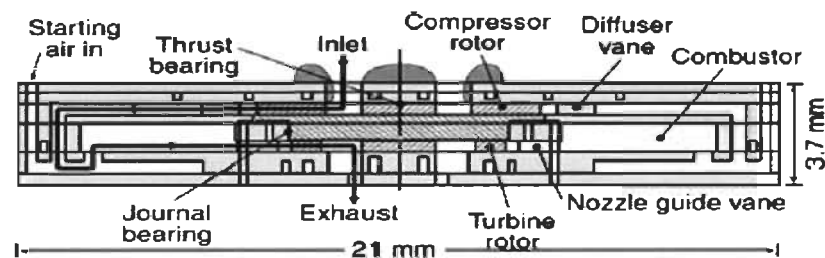


Figure 3.27 Micro turbine à gaz[2]

3.6.5 Micros moteurs

La micro combustion est aussi utilisée comme source d'énergie thermique dans les micros moteurs à combustion, ces dispositifs sont des moteurs rotatifs du type Wankel tel qu'on peut voir certaines de ses pièces à la **figure 3.28**. Le micro moteur développé dans les laboratoires de l'Université de Californie à Berkeley a un volume de 1000-1700 mm³ avec une cylindrée de 78-348 mm³. Le mélange réactif utilisé est l'hydrogène/air avec une bougie de préchauffage comme dispositif d'allumage [62], l'énergie produite est d'environ 2,7 W, 9300 rpm.



Figure 3.28 Pièces mécaniques d'un micro moteur[2]

3.7 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était de mettre en évidence les modèles utilisés actuellement dans le cadre des travaux de recherche à travers le monde. Cette mise en évidence contribue à un état des lieux des problèmes posés par la modélisation de la micro combustion. Surtout, elle recense les solutions apportées pour la résolution de ces problèmes.

Il ressort clairement que plusieurs études expérimentales et numériques ont été menées avec succès montrant la possibilité de la production d'une micro flamme de combustion. Les problèmes rencontrés sont ceux de l'extinction, de l'éruption de la flamme et du flash back, dont les causes sont les pertes de chaleur à travers les parois, les conditions limites, le

type de combustible. Les solutions proposées telles que la récupération de la chaleur, le chauffage des parois, le chauffage des réactifs permettent une production d'énergie meilleure que celle que pourraient apporter les piles ou les batteries.

Tous les travaux de simulations effectuées ont été réalisés dans leur quasi-totalité avec le logiciel Fluent ou par des codes maison, avec des résultats en accord global avec les phénomènes réellement perçus lors des simulations expérimentales sans que malheureusement l'aspect de la production des polluants de ces dispositifs ne soit soulevé ce qui justifie l'objet de notre étude.

Chapitre 4 - Analyse des flammes en micro combustion

4.1 Introduction

Une flamme peut se définir comme étant la production d'une lumière vive à la suite d'une réaction de combustion. Pour prendre forme, elle nécessite au préalable l'apport d'un combustible et d'un comburant, le mélange de ces deux corps (réactifs) va générer au bout d'un certain temps et d'une élévation de la température du milieu d'écoulement de ces corps, une réaction de combustion exothermique (fort dégagement de chaleur).

En d'autres termes, une flamme correspond à une onde de déflagration se propageant à une vitesse constante, perpendiculaire à la surface de front de flamme et détermine la quantité de mélange susceptible de brûler. La vitesse de propagation et la structure de l'onde de déflagration sont les caractéristiques importantes du mélange combustible-comburant.

Les flammes de pré mélange se développent au sein d'un mélange explosif tandis que les flammes de diffusion se développent à la surface de contact entre les gaz combustibles et le comburant. La combustion peut être laminaire ou turbulente selon la vitesse des écoulements à l'intérieur de la chambre de combustion, mais l'analyse d'une flamme se fait toujours par rapport à un écoulement laminaire. Le présent chapitre se focalise sur la combustion laminaire afin de faire une analyse de la structure des flammes générées dans les micros réacteurs.

4.2 Analyse d'une flamme laminaire

Dans un tube ouvert, des réactifs enflammés dans une des extrémités par une source de chaleur entrent en régime de combustion vive; la chaleur et les radicaux produits localement diffusent vers la couche adjacente en avant du front de flamme de telle façon que cette couche est portée à l'inflammation et devient elle-même une source de chaleur avec des radicaux capables eux-mêmes d'initier une réaction chimique dans la couche suivante. C'est le processus d'auto inflammation qui permet à la flamme de s'auto entretenir après ignition. De cette façon, une zone de combustion se propage au sein du tube ouvert à travers le mélange gazeux ; c'est la flamme, elle sépare une zone de gaz frais (nouvellement injectés dans le réacteur) d'une zone de gaz brûlés qui sortiront du tube, ces derniers sont les produits de combustion qui seront potentiellement des polluants.

A l'intérieur de la déflagration, la température augmente d'abord dans une zone de préchauffage où les réactions s'amorcent par suite de la diffusion de la chaleur et des radicaux provenant de la région de combustion proprement dite. Les réactifs sont progressivement consommés ; des espèces intermédiaires apparaissent puis disparaissent tandis que la température augmente exponentiellement et que les produits finaux apparaissent (Figure 4.2). La partie visible de la flamme est localisée dans la zone de réaction elle est due à l'émission à haute température de radicaux excités tels que CH^* (violet bleu), C_2^* (vert), CHO^* , entre autres. qui retournent à leur état fondamental. Dans le cas des flammes riches en composés carbonés, l'émission de lumière (blanche, jaune) peut également provenir de particules de carbone incandescentes [88].

La structure de flamme peut se traduire comme l'évolution, en fonction de la distance normale au front de flamme, de la température, de la vitesse d'écoulement et de la

concentration des espèces chimiques présentes dans un milieu réactionnel. L'analyse de la structure d'une flamme consiste donc à établir les profils de concentrations d'un maximum d'espèces moléculaires et radicalaires présentes dans la flamme ainsi que le profil de température. C'est donc le résultat d'un fort couplage entre un processus chimique qui produit rapidement de la chaleur et des espèces réactives, et un processus physique de transport de matière par diffusion, de transfert de chaleur par convection, rayonnement et par conduction. La production de chaleur et des radicaux accélèrent la réaction tandis que leur transport vers les gaz frais en limite la vitesse. Quand les deux phénomènes sont d'égale importance, la flamme se propage à vitesse subsonique.

4.3 La combustion

La combustion est un moyen utilisé pour la conversion de l'énergie chimique en une autre forme d'énergie (thermique, mécanique, électrique), elle se déroule dans une enceinte qui peut conserver de la chaleur générée au travers de la production d'une flamme. Elle est caractérisée par une réaction irréversible fortement exothermique entre un combustible et un comburant selon le schéma ci-dessous.

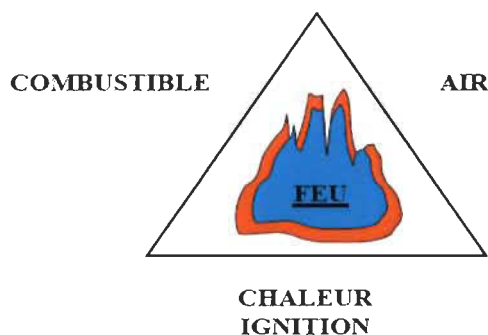
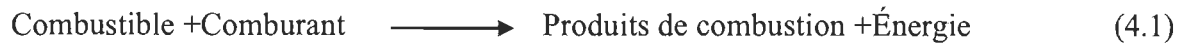


Figure 4.1 Schéma de réalisation d'une combustion [89]

Ce schéma se traduit par une réaction chimique dite réaction de combustion;



Cette réaction donne lieu à un fort dégagement de chaleur qui se produit dans une zone très mince; c'est la flamme. Les flammes les plus courantes ont des épaisseurs δ_L de l'ordre de 0,1 à 1mm conduisant à des rapports de température $\frac{T_b}{T_u}$ (T_b Température de gaz brûlés et T_u températures des gaz frais) très élevés, de l'ordre de 5 à 7 avec de larges variations de masse volumique[90] .

Les flammes issues de la combustion peuvent être laminaires ou turbulentes, cet état dépend des vitesses d'entrée des réactifs dans la chambre de combustion, cependant les flammes laminaires bien qu'étant celles qu'on rencontre le moins dans les unités industrielles de production d'énergie sont celles qui permettent l'étude et la compréhension de la structure des flammes [90, 91]. L'analyse de la structure d'une flamme laminaire ne peut se faire si l'on a bien modélisé le problème physique posé par la production de la flamme. Le problème physique est celui des écoulements réactifs, un couplage multi physiques des écoulements, de transport d'espèces et de transfert thermique (conduction, convection et rayonnement)

4.3.1 Équations régissant les écoulements réactifs laminaires

4.3.1.1 Variables de la thermochimie

Lors d'une combustion plusieurs espèces chimiques sont mises en présence pour donner naissance à d'autres corps après la réaction, lesquels corps dépendent non seulement des conditions de mélange des réactifs mais aussi de la manière avec laquelle se déroule la

combustion. Toutes ces espèces sont caractérisées par leur fraction massique notée Y_k pour $k=1$ à N , avec N le nombre d'espèces (mélange de N gaz parfaits) dans le mélange réactif.

On a
$$Y_k = \frac{m_k}{m} \quad (4.2)$$

Où m_k est la masse d'espèce k présent dans le volume V et m la masse totale de gaz dans le même volume.

Dans un mélange de gaz parfaits, la densité est donnée par :

$$\rho = \sum_{k=1}^N \rho_k \quad (4.3)$$

La pression totale s'exprime sous la forme:

$$p = \sum_{k=1}^N p_k \quad \text{où} \quad p_k = \rho_k \frac{\bar{R}}{W_k} T \quad (4.4)$$

T est la température lors de la réaction, $\bar{R} = 8,3143 \text{ J}/(\text{mol.K})$ la constante des gaz parfaits, $\rho_k = \rho Y_k$ est la masse volumique du mélange ou encore la densité, W_k est la masse moléculaire moyenne de l'espèce k , d'autre part

$$\frac{1}{W} = \sum_{k=1}^N \frac{Y_k}{W_k} \quad (4.5)$$

La fraction massique est égale à Y_k . L'enthalpie h_k de l'espèce k s'obtient par :

$$h_k = h_{s,k} + \Delta h_{f,k}^0 = \int_{T_0}^T C_{p,k} dT + \Delta h_{f,k}^0 \quad (4.6)$$

L'enthalpie sensible $h_{s,k}$ est produite par la réaction chimique et elle est nulle à $T=T_0$

L'enthalpie chimique $\Delta h_{f,k}^0$ ou enthalpie de formation représente l'enthalpie nécessaire pour former 1 kilogramme de l'espèce k .

$C_{p,k}$ est la chaleur spécifique à pression constante de l'espèce k et donné pour un gaz parfait diatomique [92] par la formule;

$$C_{p,k} = 2.5 \frac{R}{W_k} \quad (4.7)$$

L'enthalpie du mélange s'obtient par;

$$h = \sum_{k=1}^N h_k T_k = \int_{T_0}^T C_p dT + \sum_{k=1}^N \Delta h_{f,k}^0 Y_K \quad (4.8)$$

avec la chaleur spécifique du mélange

$$C_p = \sum_{k=1}^N C_{p,k} Y_k \quad (4.9)$$

L'énergie interne s'obtient par l'expression :

$$e = h - \frac{p}{\rho} = \int_{T_0}^T C_v dT - \frac{RT_0}{W} + \sum_{k=1}^N \Delta h_{f,k}^0 Y_K = \sum_{k=1}^N e_k Y_k \quad (4.10)$$

On exprimera la chaleur spécifique à volume constant par

$$C_v = C_p - \tilde{R} \quad (4.11)$$

Et \tilde{R} la constante de gaz

$$R = \frac{\tilde{R}}{W} = \tilde{R} \cdot \sum_{k=1}^N \frac{Y_k}{W_k} \quad (4.12)$$

4.3.1.2 Équations de conservation, de quantité de mouvement et de transport

- Équation de continuité

Elle permet d'exprimer la conservation de la masse mais aussi de spécifier les vitesses mises en jeu par rapport aux réactifs.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial(\rho u_i)}{\partial x_i} = 0 \quad (4.13)$$

- Équation de transport des espèces ou de conservation de masse pour l'espèce k

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho(u_i + V_{i,k})Y_k) = \dot{\omega}_k \quad \text{pour } k=1 \dots N \quad (4.14)$$

$V_{i,k}$ est la composante i de la vitesse de diffusion V_k de l'espèce k et $\dot{\omega}_k$ est le taux de production de l'espèce k.

- La vitesse de diffusion est donnée par la loi de Fick

$$V_{i,k} = -D_k \frac{1}{Y_k} \frac{\partial Y_k}{\partial x_i} \quad \text{pour } k=1 \text{ à } N_{k-1} \quad (4.15)$$

D_k le coefficient de diffusion de l'espèce k

Lorsqu'on remplace (4.14) dans (4.13) on obtient ;

$$\frac{\partial \rho Y_k}{\partial t} + \frac{\partial \rho u_i Y_k}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial t} \left(\rho D_k \frac{\partial Y_k}{\partial x_i} \right) + \dot{\omega}_k \quad \text{pour } k = 1 \dots N_k \quad (4.16)$$

- Équation de la quantité de mouvement

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho u_j + \frac{\partial}{\partial x_i} \rho u_i u_k = -\frac{\partial P}{\partial x_j} + \frac{\partial \tau_{i,j}}{\partial x_i} + \rho \sum_{k=1}^N Y_k f_{k,j} = \frac{\partial \sigma_{i,j}}{\partial x_i} + \rho \sum_{k=1}^N Y_k f_{k,j} \quad (4.17)$$

$f_{k,j}$ est la force de volume agissant sur l'espèce k dans la direction j et $\tau_{i,j}$ est le tenseur viscosité donné par:

$$\tau_{i,j} = -\frac{2}{3} \mu \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{i,j} + \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (4.18)$$

$\sigma_{i,j}$ est un tenseur qui combine à la fois la pression et le tenseur visqueux

$$\sigma_{i,j} = \tau_{i,j} - p\delta_{i,j} = -p\delta_{i,j} - \frac{2}{3}\mu \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \delta_{i,j} + \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (4.19)$$

μ représente la viscosité dynamique et $\delta_{i,j}$ est le delta de Kronecker

- Équation de conservation de l'énergie

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \rho h_s + \frac{\partial}{\partial x_i} \rho u_i h_s = \\ \dot{\omega}_T + \dot{Q} - \frac{DP}{Dt} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + \tau_{i,j} \frac{\partial u_i}{\partial x_{ij}} - \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho \sum_{k=1}^N V_{k,j} Y_k h_{s,k} \right) \end{aligned} \quad (4.20)$$

Le flux d'énergie $\lambda \frac{\partial T}{\partial x_i}$ est le terme de propagation de la chaleur exprimée par la loi de Fourier.

$\rho \sum_{k=1}^N V_{k,j} Y_k h_{s,k}$ représente la diffusion des différentes espèces avec des enthalpies différentes.

\dot{Q} représente la source de chaleur due à l'ignition des réactifs (étincelles, laser, arc électrique, tandis que $\dot{\omega}_T$ est le terme source qui représente le dégagement de chaleur apportée par la combustion complète des réactifs, soit :

$$\dot{\omega}_T = \sum_{k=1}^N \Delta h_{f,k}^0 \dot{\omega}_k \quad (4.21)$$

Le système d'équations de Navier Stokes pour un écoulement réactif est fermé par l'équation d'état pour un gaz parfait $p = \rho RT$

4.3.2 Différents schémas de la cinétique chimique

La cinétique chimique étudie la vitesse avec laquelle s'effectuent les réactions chimiques (dans notre cas la combustion); elle permet de définir la vitesse de disparition

d'un réactif et de formation d'un produit. La vitesse d'évolution d'un système chimique est directement influencée par les facteurs cinétiques (concentration des espèces, température du milieu, éclairage, réactifs ou catalyseurs)

Soit un système chimique ou encore un mécanisme global de N espèces qui réagissent à travers L réactions chimiques

$$\sum_{k=1}^N v'_{k,j} M_k \rightarrow \sum_{k=1}^N v''_{k,j} M_k \text{ pour } j = 1 \text{ à } L \quad (4.22)$$

M_k est le symbole chimique de l'espèce k, $v'_{k,j}$ et $v''_{k,j}$ sont les coefficients stœchiométriques molaires de l'espèce k dans la réaction j.

Le taux de réaction massique global $\dot{\omega}_k$ est la somme des taux $\dot{\omega}_{k,j}$ produits par les L réactions.

$$\dot{\omega}_k = \sum_{j=1}^L \dot{\omega}_{k,j} = W_k \sum_{j=1}^L v_{k,j} Q_j \quad \text{avec } v_{k,j} = v''_{k,j} - v'_{k,j} \quad (4.23)$$

R_j est le taux de progression de la réaction j [92], on l'obtient aussi par la formule

$$R_j = K_{fj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\rho_{Y_k}}{M_k} \right)^{v_{ij}^f} - K_{bj} \prod_{k=1}^N \left(\frac{\rho_{Y_k}}{M_k} \right)^{v_{ij}^b} \quad (4.24)$$

$\frac{\rho_{Y_k}}{M_k}$ est la concentration molaire de l'espèce k.

K_{fj} et K_{bj} représentent les taux directs et inverses de la réaction j. Ces taux jouent un rôle majeur lors de la modélisation d'un problème d'écoulement réactif. Afin de décrire les processus chimiques qui se déroulent dans un réacteur, on a le choix entre deux types de

mécanisme de cinétique chimique: Le mécanisme de cinétique chimique détaillée et le mécanisme de cinétique chimique simplifiée.

4.3.2.1 Mécanisme cinétique chimique détaillé

Grâce au développement de méthodes de calcul de plus en plus efficaces, de calculateurs de plus en plus performants et grâce à une meilleure connaissance des paramètres cinétiques d'un nombre de réactions de plus en plus grand, il est possible d'envisager l'utilisation de schémas cinétiques détaillés pour modéliser l'oxydation des hydrocarbures.

Le mécanisme ou schéma cinétique détaillé est un ensemble de réactions chimiques, pour la plupart élémentaires. Les autres réactions transcrivent globalement des processus complexes où les espèces intermédiaires qui ont été négligées dans la mesure où elles n'affectent pas les prévisions du modèle.

Pour n espèces, on peut avoir n^2 paires de réactifs et pour chaque paire, il y a un nombre donné de produits possibles.

L'écriture du mécanisme peut se faire à partir des espèces les plus simples, jusqu'à l'hydrocarbure initial; c'est ainsi que l'on peut distinguer le système H_2/O_2 , le système $CO/H_2/O_2$, le système espèces intermédiaires H_2/O_2 et enfin la partie propre à l'hydrocarbure initial.

Pour qu'un mécanisme soit validé, il faut qu'il soit testé dans un grand nombre de conditions expérimentales, car des réactions élémentaires données peuvent jouer un rôle différent pour des régimes expérimentaux différents. Par exemple, les réactions entre un hydrocarbure et l'hydrogène atomique sont importantes pour les mélanges riches mais

moins importantes dans le cas des mélanges pauvres pour lesquels les réactions avec le radical hydroxyle et l'oxygène atomique prédominent. De même, en fonction de la température, l'importance relative des différentes réactions peut subir des variations notables.

En plus des processus élémentaires, on peut être amené à écrire des étapes globales, faute de connaître le cheminement réactionnel exact ou pour éviter de compliquer inutilement le mécanisme par l'introduction d'espèces intermédiaires non indispensables.

Le mécanisme de cinétique chimique détaillé de la combustion du méthane peut se décrire au travers d'une centaine d'équations chimiques et trois cents espèces chimiques à suivre, ce qui exige une puissance importante de calcul des ordinateurs pour des travaux de simulation. Plusieurs études ont toujours recherché à simplifier ce système d'équations, par exemple Li et *al.* ont étudié l'effet des dimensions, de la géométrie d'un micro réacteur et des conditions limites sur la température d'une micro flamme de pré mélange méthane/air au travers d'un mécanisme chimique de 25 équations avec 17 espèces [50]. La documentation sur les mécanismes de cinétique détaillée est abondante telle que compilée par Westbrook et Dryer tout particulièrement [93].

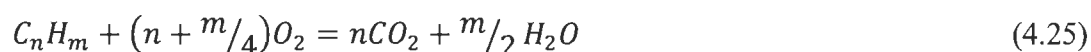
4.3.2.2 Mécanismes cinétiques chimiques simplifiés

Les mécanismes de cinétique chimique simplifiée sont utilisés pour réduire les temps de calcul lors des travaux de simulation, encore appelé schémas cinétiques globaux. Ils permettent la réduction de la centaine d'équations chimiques en quelques équations capables de donner des résultats proches des données réelles ou expérimentales avec une

plus forte probabilité d'apparition de certaines espèces, ce qui induit que ne soit pas pris en compte tous les phénomènes chimiques qui se produisent au cours d'une réaction chimique.

4.3.2.2.1 *Les schémas globaux à une équation*

Soit une équation générale d'une réaction chimique :



La vitesse de cette réaction dans la plupart des cas est approximée par la loi d'Arrhenius qui permet d'écrire;

$$R_j = A_j T^B (C_nH_m)^a (O_2)^b \exp\left(-\frac{E_j}{RT}\right) \quad (4.26)$$

A_j est une constante appelée facteur pré exponentiel d'Arrhenius qu'on obtient par modélisation en faisant une comparaison entre les résultats de simulation et les données expérimentales.

E_j est l'énergie d'activation qui est tout aussi une constante qu'on obtient par modélisation.

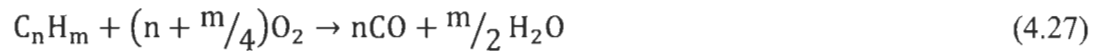
Ce schéma a été appliqué au calcul des vitesses de flamme laminaire de divers hydrocarbures dont des alcanes normaux (du méthane au n-décane), des méthyle-alcanes, l'acétylène, des oléfines et des aromatiques par Westbrook et Dryer [93] qui ont proposé plusieurs modèles de mécanismes globaux à une équation adaptés pour tous ces combustibles.

Ces schémas à une seule réaction supposent que les seuls produits formés soient CO_2 et H_2O et ne permettent pas de représenter les détails d'inflammation liés à l'accumulation des composés intermédiaires. La température calculée est sensiblement plus élevée que celle

mesurée dans la flamme, conséquence de la non-prise en compte des équilibres entre CO_2 et CO et entre H_2O et H_2 , en fin de réaction.

4.3.2.2.2 *Les schémas globaux à deux équations*

Ils représentent la combustion d'un hydrocarbure par une séquence de deux réactions (la première irréversible et la seconde réversible) :



La température de flamme peut être calculée avec une bonne précision tout comme la concentration en monoxyde de carbone à l'équilibre. Mais ces schémas rendent compte de manière insuffisante de la nature séquentielle de la combustion des hydrocarbures. La phase initiale d'oxydation précédant l'élévation de température n'apparaît pas.

4.3.2.2.3 *Les schémas cinétiques globaux à plusieurs étapes*

Ce type de schéma a été développé par Hautman et *al.* [94] et représente la combustion de l'hydrocarbure par une première étape globale produisant de l'éthylène:



Suivie de trois autres équations correspondant respectivement à l'oxydation de l'éthylène, l'équilibre entre CO_2 et CO et l'équilibre entre H_2O et H_2 :





Ce schéma prend en compte des étapes principales de la combustion des hydrocarbures et permet de représenter l'accumulation d'éthylène comme composé intermédiaire. Il donne aussi une représentation appréciable du profil de concentration de l'hydrocarbure initial en fonction du temps; il prend en compte les processus compétitifs entre produits intermédiaires et produits initiaux au cours de la réaction.

4.3.3 Notion de stœchiométrie

La notion de stœchiométrie que nous abordons fait appel à la théorie de mélange. Cependant, on peut la définir comme un état de mélange parfait en proportion tel que lors d'une réaction de combustion, tout le combustible est totalement consommé par le comburant en présence.

Soit une réaction chimique écrite sous la forme suivante $F + sO \rightarrow (1 + s)P$

On définit dès lors le rapport stœchiométrique de masse noté s comme étant la masse minimale d'oxydant par unité de combustible nécessaire pour une combustion complète.

$$s = \frac{Y_O}{Y_F}, \text{ rapport de la fraction massique du comburant/combustible} \quad (4.33)$$

Le coefficient d'excès d'air noté λ est défini par :

$$\lambda = \left(\frac{Y_O}{Y_F} \right) / \left(\frac{Y_O}{Y_F} \right)_{st} \quad (4.34)$$

L'excès d'air est un rapport de ce qui est réel comme proportion de mélange sur le rapport stœchiométrique, donc sur ce qui serait l'idéal.

Une autre constante est très souvent utilisée dans la caractérisation d'une équation de combustion, c'est la notion de richesse de mélange qui représente en fait une comparaison en proportion des réactifs par rapport au combustible. Un mélange sera pauvre ou riche par rapport à la quantité de combustible présente; c'est un concept contraire à celui de l'excès d'air. Il est désigné comme le ratio équivalent ϕ et défini par:

$$\phi = \frac{1}{\lambda} = \left(\frac{Y_O}{Y_F} \right)_{st} / \left(\frac{Y_O}{Y_F} \right) \quad (4.35)$$

- Pour $1 < \lambda \ll \infty$ ou $0 < \phi \ll 1$ on dit que le mélange est riche
- Pour $0 < \lambda \ll 1$ ou $1 < \phi \ll \infty$ on dit que le mélange est pauvre
- Pour $\lambda = 1$ et $\phi = 1$ on dit qu'on est dans des conditions stœchiométriques

4.4 Caractérisation des flammes laminaires

On distingue deux types de flammes, les flammes pré mélangées où nous avons un mélange des réactifs avant la zone de réaction et les flammes non pré mélangées ou flammes de diffusion où les réactifs arrivent dans la zone de réaction séparés et leur mélange se fait dans la chambre de combustion en partie. L'apport des réactifs peut se faire de deux façons :

- Les réactifs arrivent mélangés, ce mélange se fait de telle sorte que le fluide entrant dans le réacteur se trouve dans les conditions propices pour une combustion parfaite, c'est la combustion pré mélangée.
- Les réactifs arrivent séparés, les deux fluides entrent dans le corps de réacteur avec un débit différent, le mélange se produit à l'intérieur de celui-ci par le principe de

diffusion moléculaire, c'est la combustion non pré mélangée produisant une flamme de diffusion.

La combustion pré mélangée est la combustion la plus efficace, mais la moins sécuritaire car l'inflammation du mélange peut se produire avant la zone de réaction, ce qui n'est pas le cas pour les flammes de diffusion. En outre, la réalisation pratique d'une flamme de diffusion est plus simple qu'une flamme pré mélangée.

4.4.1 Caractérisation d'une flamme laminaire pré mélangée

L'étude de la structure interne d'une flamme laminaire de pré mélange représentée par la **figure 4.2** permet de distinguer plusieurs parties, on peut citer la zone de pré chauffage, la couche interne et la couche d'oxydation :

- La zone de pré chauffage est d'épaisseur $O(1)$, elle est chimiquement inerte avec un équilibre de la convection et de la diffusion, les gaz frais entrant dans la chambre de combustion ont une vitesse S_L et sont préchauffés essentiellement par les parois du réacteur.
- La couche interne est une zone mince réactive d'épaisseur $O(\delta)$. Le combustible est consommé dans cette région avec un équilibre diffusif-réactif. Elle est caractérisée par sa température T^0 qui est la température de passage entre les réactions en chaîne de branchement et de rupture [95]. Le procédé de combustion est maintenu si la couche interne est constante, dans le cas contraire les réactions peuvent s'interrompre tout particulièrement, quand le transport des radicaux et de la chaleur générée vers l'extérieur, dépasse ce qui est produit dans la couche interne, ce qui provoque l'extinction de la flamme.

- La couche d'oxydation $O(\epsilon)$ est celle où les émissions polluantes se forment, dans la plupart des cas on y retrouve le CO_2 et le H_2O

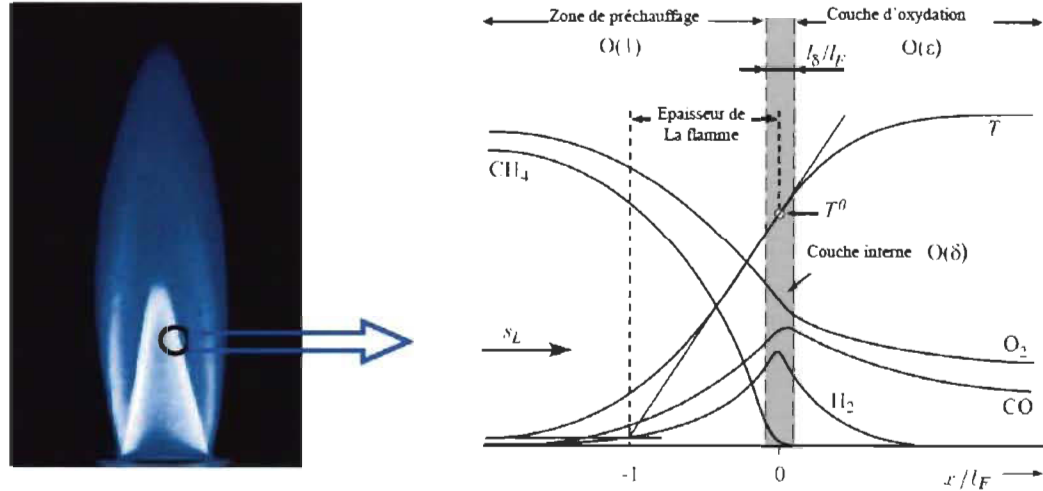


Figure 4.2 Structure interne d'une flamme laminaire stationnaire de méthane-air [95]

4.4.1.1 Grandeurs caractéristiques

Le combustible et l'oxydant sont mélangés à l'avance, les gaz réagissent en dégageant de la chaleur dans la zone de réaction de longueur δ (m), encore appelée épaisseur de la flamme laminaire et qui est en fait la distance parcourue par la chaleur libérée par la réaction pendant un temps τ_c qui est le temps de combustion au cours de son passage dans un tube de diamètre d .

$$\text{On a } \delta = (d\tau_c)^{\frac{1}{2}} \quad (4.36)$$

Les réactifs se déplacent à une vitesse de propagation perpendiculaire au front de flamme, elle est de l'ordre de 0,1 à 1 m/s[90, 91, 96].

La vitesse de la flamme S_L s'exprime par; $S_L = \frac{\delta}{\tau_c} \approx \left(\frac{d}{\tau_c} \right)^{\frac{1}{2}}$ (4.37)

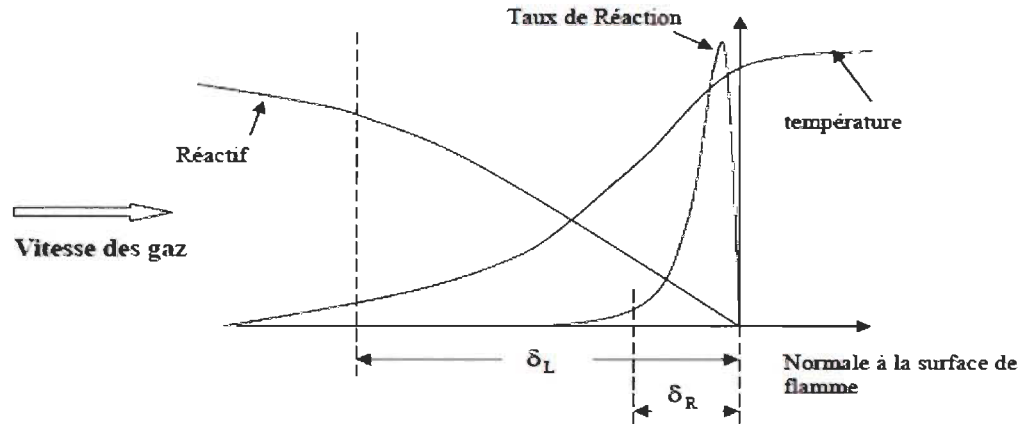


Figure 4.3 : Profil d'une flamme laminaire pré-mélangée [4]

Il est possible de déterminer la vitesse de propagation de la flamme d'une autre façon;

- Le principe de la conservation des masses permet d'avoir

$$\rho_{imb} S_L A = \rho_{imb} V_{imb} A = \rho_{imb} V_{imb} A = \dot{m} \quad (4.38)$$

- Le principe de la conservation de l'énergie permet d'avoir

$$\dot{m} C_p (T_{inf} - T_0) = k \left(\frac{T_f - T_{inf}}{\delta} \right) A \quad (4.39)$$

L'équation 4.39 traduit la conservation de la chaleur dans la zone de combustion, la partie gauche de l'équation donne l'énergie produite tandis que celle de droite exprime la chaleur transmise par conduction sur la paroi délimitée par la zone de combustion.

k est la conductivité thermique du mélange

δ est l'épaisseur de flamme

A: surface perpendiculaire à l'écoulement

T_{inf} Température d'inflammation du mélange

T_f Température de la flamme

T_0 Température initiale des réactifs

On déduit donc
$$S_L = \frac{k}{\rho C_p} \frac{(T_f - T_{inf})}{(T_{inf} - T_0) \delta} \quad (4.40)$$

- Si on remplace (4.40) dans (4.37) on se retrouve avec une autre équation

$$S_L = \left(\frac{k}{\rho C_p} \frac{(T_f - T_{inf})}{(T_{inf} - T_0) \tau_c} \right)^{1/2} \quad (4.41)$$

En régime permanent le flux massique entrant dans la zone de réaction doit être égale au taux de masse consommé dans cette zone, on établit donc que;

$$\rho_{imb} S_L = \rho_{imb} V_{imb} = \dot{\omega} \delta \quad (4.42)$$

$\dot{\omega}$ est la vitesse de réaction dont l'unité est le $g/cm^3 s$

En combinant (4.41) et (4.42), on peut donc écrire

$$S_L = \left(\frac{k}{\rho C_p} \frac{(T_f - T_{inf}) \dot{\omega}}{(T_{inf} - T_0) \rho} \right)^{1/2} \sim \alpha \left(\frac{\dot{\omega}}{\rho} \right)^{1/2} \quad (4.43)$$

Il est donc possible de déduire une relation entre la vitesse et l'épaisseur, soit :

$$S_L \sim \frac{\alpha}{\delta} \quad (4.44)$$

Les équations précédentes illustrent l'importance des variables physico-chimiques sur la vitesse de flamme laminaire.

4.4.1.2 Distance d'auto extinction

Lorsqu'une flamme est générée, il est important qu'elle puisse s'auto entretenir, ce qui n'est pas toujours possible, car elle est sujette au phénomène d'extinction. L'extinction d'une flamme est due à plusieurs facteurs, dont deux principaux :

- Les facteurs thermiques d'extinction de la flamme s'expliquent par le fait que la chaleur générée par la réaction n'est pas suffisamment conservée pour réchauffer les gaz frais afin de les porter à une température d'inflammation
- Étant donné que la flamme fait corps avec le réacteur, les facteurs chimiques d'extinction de la flamme sont généralement dus à la destruction des radicaux libres qui permettent des recombinaisons des molécules qui favorisent la réaction. Dans ce cas les parois jouent un rôle important à tel point que lorsque la flamme fait corps avec les parois, elles se doivent d'être traitées.

Le diamètre d'auto extinction (d_0) dépend de la géométrie des parois, du type de carburant, de la richesse, de la température T des réactifs, pression. La théorie d'auto extinction est basée sur le calcul de transfert de chaleur de la flamme vers la surface[97].

On présente ici un calcul élémentaire qui constitue la base à une première approche. Soit d_0 le diamètre d'auto extinction. En exprimant l'énergie dégagée par la flamme par :

$$E = \rho S_L C_p (T_{\text{flamme}} - T_0) \quad (4.45)$$

La chaleur évacuée par les parois prend la forme

$$E = k \left(\frac{dT}{dx} \right) = k \frac{\Delta T}{d_0} \quad (4.46)$$

On obtient un ratio qui traduit la perte d'énergie dans le réacteur

$$\frac{\rho S_L C_p \Delta T_{flamme}}{k \frac{\Delta T}{d_0}} = c^{ste} \quad (4.47)$$

Pour une flamme se dirigeant vers un mur, on estime de façon empirique[97]

$$\frac{S_L d_0 \Delta T_{flamme}}{\alpha \Delta T} = 8 \quad (4.48)$$

4.4.2 Caractérisation d'une flamme de diffusion

Une flamme de diffusion se caractérise par l'arrivée distincte des réactifs (**figure 4.4**), une zone de rencontre où se déroulera le mélange et le reste du micro réacteur dans lequel la combustion va avoir lieu. Le modèle de Burke et Schumann nous servira pour l'analyse des paramètres d'une flamme de diffusion évoluant dans un milieu libre

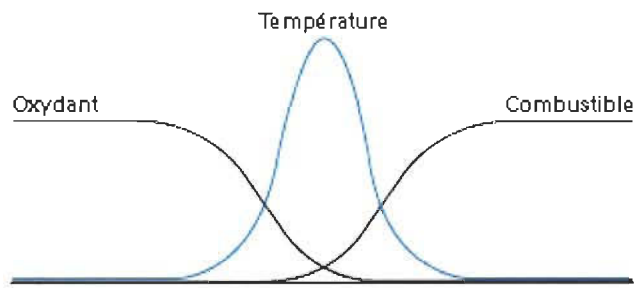


Figure 4.4 Structure de la zone de réaction d'une flamme de diffusion[90]

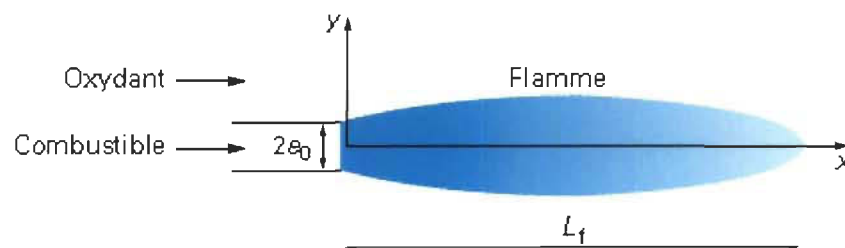


Figure 4.5 Géométrie de la flamme de Burke Schumann[90]

4.5 Stabilisation des flammes

La stabilisation d'une flamme laminaire dépend de plusieurs facteurs, que sont la vitesse d'entrée des réactifs, le temps de résidence et le temps chimique[97] entre autres. Seulement en micro combustion il faut aussi ajouter le transfert de chaleur à travers les parois, donc de la convection qui a lieu à l'extérieur de la micro chambre de combustion, mais aussi du type de paroi qui aura une influence sur les radicaux libres capables d'affecter profondément la stabilité de la flamme. Ces deux types de sources d'instabilité sont qualifiées de thermique et de chimique.

4.5.1 Vitesse de réaction, extinction

Le domaine de combustion (**figure 4.6**) est séparé par deux cas limites de mélange, mélange pur où rien ne brûle et chimie infiniment rapide, où tout ce qui peut brûler brûle. Ces deux limites déterminent le domaine dans lequel peuvent évoluer les fractions massiques en fonction de la fraction de mélange Z .

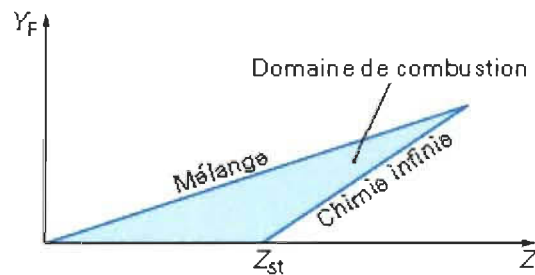


Figure 4.6 Domaine de combustion[90]

Dans une réaction de combustion, lorsque le régime stationnaire est établi, la vitesse de réaction apparaît être le produit de deux contributions[98], l'une correspondant au mélange (fonction de Z) et l'autre dépendant de la structure de la flamme.

$$\dot{\omega}_F = \underbrace{-\rho D \left(\frac{\partial Z}{\partial x_i} \right)^2}_{\text{mélange}} \underbrace{\frac{\partial^2 Y_F}{\partial Z^2}}_{\text{chimie}} = \rho \frac{\chi}{2} \frac{\partial^2 Y_F}{\partial Z^2} \quad (4.49)$$

L'expression de la vitesse de réaction traduit que, plus le mélange est important plus la vitesse de réaction est grande. L'épaisseur de la zone de diffusion constitue la limite pour ce raisonnement. L'expression de l'épaisseur de la zone de diffusion s'obtient par :

$$I_d \approx \frac{1}{|\nabla Z|} \approx \sqrt{\frac{2D}{\chi}} \quad (4.50)$$

Aussi, plus la dissipation scalaire augmente, plus la vitesse de réaction augmente, par contre l'épaisseur I_d de la couche diffusive diminue. Au-delà d'une certaine dissipation scalaire où I_d devient très faible, la chaleur qui quitte la zone de réaction n'est plus compensée par la chaleur dégagée par la réaction et la flamme s'éteint.

4.5.2 Stabilisation par auto inflammation

Dans un réacteur, pour que la combustion génère une énergie utilisable, il est important que le processus d'auto inflammation des réactifs soit effectif. Ce mécanisme permet que les réactifs mis en contact s'auto-enflamment spontanément. Il remplit à la fois le rôle d'allumage sans apport continu d'énergie externe pour initier la combustion et la stabilisation de la flamme. En général, la flamme ne se développe qu'à partir d'une certaine distance d_i (distance d'auto inflammation), car le pré mélange se forme d'abord en aval des lèvres du brûleur et ensuite s'enflamme. En pratique pour qu'il y ait auto inflammation, il faut que :

- Le couple de réactifs réagisse spontanément dans les conditions d'injection, ce qui n'est pas le cas pour des conditions usuelles de fonctionnement et à pression atmosphérique
- Au moins un des réactifs soit pré chauffé jusqu'à une température suffisante pour provoquer l'auto inflammation

La connaissance et la maîtrise de la distance d'auto inflammation sont très importantes pour la conception des foyers de combustion et tout particulièrement dans le cas des micro et nano chambres de combustion.

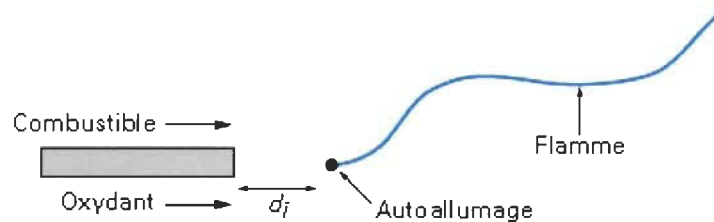


Figure 4.7 Stabilisation d'une flamme par auto inflammation[90]

4.5.3 Stabilisation sur les lèvres du brûleur

Ce type de stabilisation n'est possible que pour une combustion à jet libre. Il faut pour cela que les échanges thermiques avec la flamme permettent aux lèvres du brûleur d'être suffisamment chaudes, ainsi la flamme peut s'accrocher à celles-ci. Cependant, cette stabilisation est fragile car une légère augmentation de la vitesse du jet de combustible conduit à la diminution de la température des lèvres du brûleur et donc à l'extinction de la flamme.

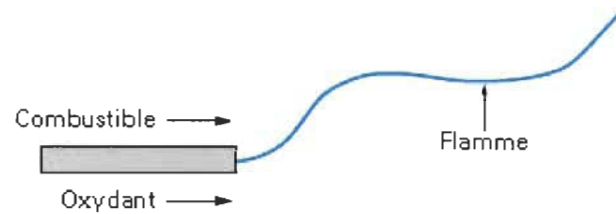


Figure 4.8 Stabilisation d'une flamme par les lèvres du brûleur[90]

4.5.4 Stabilisation par flamme triple

La formation d'une flamme se matérialise par une zone de pré mélange se formant en aval du brûleur. La formation de ce pré mélange n'est pas uniforme bien qu'il existe des zones où la richesse est voisine de l'unité. Ce pré mélange est enflammé par un apport d'une énergie externe (flamme, étincelle), la flamme se développe et se propage vers l'amont du brûleur avec une vitesse S_L . La flamme qui se forme a deux branches; une branche riche en combustible (du côté de l'écoulement du combustible), qui laisse du combustible imbrûlé en aval et une branche pauvre (du côté de l'oxydant) qui laisse en aval des gaz chauds oxydants; au milieu de ces deux branches se développe une autre branche qui est la flamme de diffusion proprement dite : c'est la flamme de diffusion triple [90]. Les flammes triples sont fragiles et ne peuvent supporter que des vitesses d'écoulement des réactifs faibles de l'ordre de dizaines de cm/s. Une perturbation des conditions opératives peut conduire à les souffler.

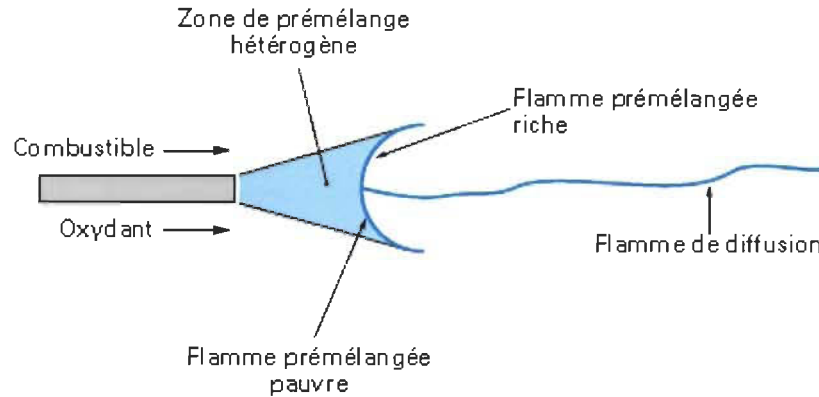


Figure 4.9 Stabilisation par flamme triple[90]

4.6 Étude comparative d'une micro flamme et d'une macro flamme

Une étude comparative de la structure d'une micro flamme de combustion se fait par rapport à celle de la macro flamme de combustion, quoi que les problèmes posés par l'une et l'autre des flammes soient totalement différents. Dans une macro flamme de combustion, la flamme évolue en jet libre, ce qui fait que dans sa caractérisation on néglige les effets de paroi (perte de chaleur, influence des radicaux libres sur le déroulement de la combustion), qui sont prépondérants dans la mise en place d'une micro combustion[38]. Dans la micro combustion, la flamme fait corps avec la chambre de combustion, la stabilité de la flamme générée est une combinaison de l'équilibre de la chaleur produite par la réaction de combustion, de la perte de chaleur à travers les parois, du type de surface de la paroi, des conditions limites et particulièrement la vitesse d'entrée des réactifs et le type de combustible [58].

4.6.1 Modélisation des échanges de chaleur dans un micro réacteur

Dans un micro réacteur, la stabilité de la flamme dépend largement des échanges de chaleur tel qu'illustré à la **figure 4.10** , lorsque la chaleur produite est fortement évacuée à

travers les parois, la température des parois permet l'ignition du mélange, mais la flamme n'est pas suffisamment entretenue pour qu'elle puisse se développer, en outre lorsque le mélange des réactifs n'est pas complété dans le micro réacteur la zone de réaction aura tendance à se développer à l'extérieur du micro réacteur. Il est donc important de contrôler les échanges de chaleur afin de pouvoir définir les techniques de réduction de la perte de chaleur, de déterminer la longueur du micro réacteur. Leach, T. T., C. P. Cadou, et *al.* décrivent les pertes de chaleur dans un micro réacteur tubulaire et de déterminer deux zones très importantes qui apparaissent, la zone de préchauffage et la zone de réacteur[15].

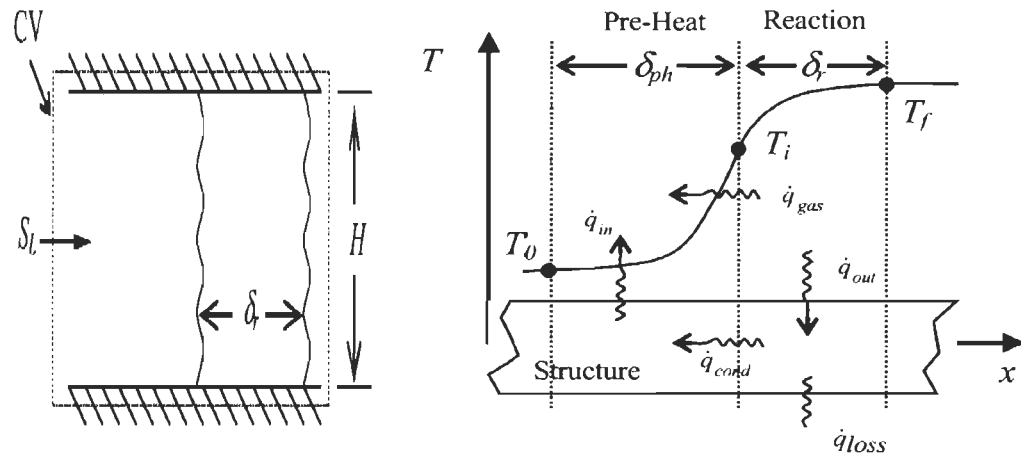


Figure 4.10 Volume de contrôle d'un micro réacteur, modélisations des échanges de chaleur[15]

Il est difficile de savoir à quel niveau se délimite la zone de préchauffage, cette zone est fixée par la température d'ignition. La chaleur produite par la réaction est la somme de la chaleur qui sera emmagasinée dans les parois, celle évacuée à l'extérieur par les parois et celle transportée par les produits de combustion. La paroi joue un rôle significatif, parce que la température en amont est élevée, il y aura conduction de chaleur vers l'aval permettant ainsi le préchauffage des réactifs froids entrant dans le réacteur

4.7 Conclusion

La combustion dans un micro réacteur est l'effet d'un mélange combustible comburant dans des conditions propices permettant le déclenchement d'une détonation. Le mélange réactif est modélisé par des équations différentielles caractérisant l'écoulement du fluide, le transfert de chaleur dans le fluide et à travers les parois ainsi que le transport d'espèces.

Pour analyser la micro combustion les principes utilisés sont les mêmes que ceux de la macro combustion. Seulement, la particularité des dimensions extrêmement petites de l'entrée des réactifs dans le réacteur entraîne des difficultés non rencontrées dans les réacteurs de dimensions beaucoup plus importantes.

Ce chapitre avait pour but de présenter les principes de combustion, leur utilisation en micro combustion, enfin de mieux comprendre les difficultés à vaincre lors des simulations. On peut retenir que les flammes dans un micro réacteur sont très sensibles et susceptibles de subir les phénomènes de « flash back », de soufflement, d'extinctions répétitives lorsque, la vitesse d'entrée des réactifs est successivement plus faible, plus grande que celle de la vitesse de réaction, ou si la perte de chaleur à travers les parois est plus importante que la chaleur générée. Les micros flammes sont stabilisées par un processus d'auto inflammation qui se produit au contact des parois dont la température est très élevée, mais aussi par flamme triple.

Chapitre 5 - **Modélisation et simulation numérique d'une micro flamme de pré mélange méthane/air**

5.1 Introduction

Tous les travaux qui suivent, sont basés sur un mélange méthane/air comme fluide réactif s'écoulant dans un micro réacteur simple de forme rectangulaire. Ce choix se justifie par le fait que le méthane est un combustible bien connu et dont les propriétés thermo physiques sont maîtrisées tout comme sa cinétique chimique aussi bien détaillée que simplifiée. De plus comme il s'agit d'une étude numérique à valider par des valeurs expérimentales plus tard, il était judicieux d'avoir un modèle qui a fait l'objet d'études expérimentales avec les données dans la littérature pour fins de comparaison.

Dans le cadre de ce chapitre, la simulation d'une flamme de pré mélange méthane/air, est présentée dans un premier temps; cette flamme a été simulée avec un modèle de cinétique chimique tiré de la littérature afin de reproduire à l'aide du logiciel Comsol 4.2a les paramètres de fonctionnement obtenus par D.G. Northon et D.G. Vlachos[58]. Ces données permettraient de juger du fonctionnement approprié du logiciel utilisé pour l'étude. Par la suite dans le but d'évaluer l'influence de la cinétique chimique sur la stabilité d'une micro flamme, plusieurs modèles de cinétique chimique à une équation globale ont été utilisés (Mantel, Duterque, Arrhenius), pour simuler la même flamme, l'effectivité de la production d'une flamme numérique permettrait d'atteindre le premier objectif visé.

5.2 Simulation numérique d'une flamme de pré mélange méthane/oxygène à l'aide du logiciel Comsol 4.2a : Modèle du poster scientifique présenté à la Conférence d'Amsterdam.

5.2.1 Introduction

Le développement des MPGs (Micro Power Generator) ces dix dernières années a été grandement facilité par la simulation numérique de la combustion dans des dispositifs microscopiques. Les résultats de plus en plus précis des logiciels et des codes maison développés pour prédire les paramètres de fonctionnement des micros réacteurs et comprendre les problèmes qui influencent la stabilité de la flamme ont permis de mettre au point des dispositifs, robustes et performants. Ainsi un logiciel de plus permettant la simulation facile des écoulements réactifs dans des dispositifs de dimensions réduites serait un atout non négligeable pour l'amélioration du fonctionnement et la conception de tels dispositifs.

Comsol 4.2a est un logiciel puissant utilisé dans la résolution de nombreux problèmes d'ingénierie, il offre l'avantage d'être conçu pour la simulation des MEMS (Micro Electro Mechanical System), de même il est capable de modéliser et de simuler des réactions chimiques et de les coupler avec plusieurs autres études physiques, écoulement, transfert de masse, transfert thermique comme c'est le cas dans les MPG. Cependant, à ce jour, il n'a jamais été utilisé pour la simulation de la combustion dans les micros réacteurs.

Cette partie de la recherche se propose d'étudier la possibilité de modéliser et de simuler une micro flamme de pré mélange méthane/oxygène dans un micro réacteur tubulaire dans les conditions stœchiométriques.

5.2.2 Modèle et simulation

Un mélange méthane/oxygène dans les conditions stœchiométriques est introduit à une vitesse de 0,5 m/s dans un réacteur rectangulaire (**Figure 5.4**) de dimensions; entrée des réactifs 600µm, longueur du réacteur 10000 µm avec des parois en alumina d'épaisseur 200 µm. L'étude de la cinétique chimique est réalisée dans un modèle de réacteur plug flow et se fait avec le module <<reaction engineering>> qui permet de mettre en place le modèle de cinétique chimique et de calculer les paramètres thermodynamiques et de transport. Les conditions dans lesquelles la combustion va se faire sont alors définies. Dans cette simulation un modèle de cinétique chimique simplifiée (Westbrook et Dryer) à une équation et quatre espèces a été choisi; ce qui donne :



$$r(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 2,07 \cdot 10^{11} \exp\left(\frac{-2.03 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) c_{\text{CH}_4}^{0,2} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,5} \quad 5.2$$

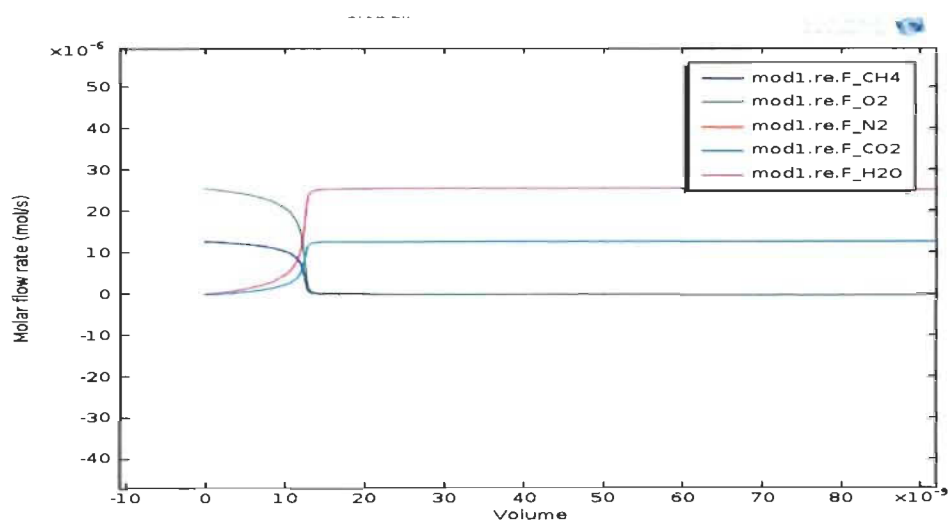


Figure 5.1 Évolution de la masse molaire des espèces en fonction du volume en m^3

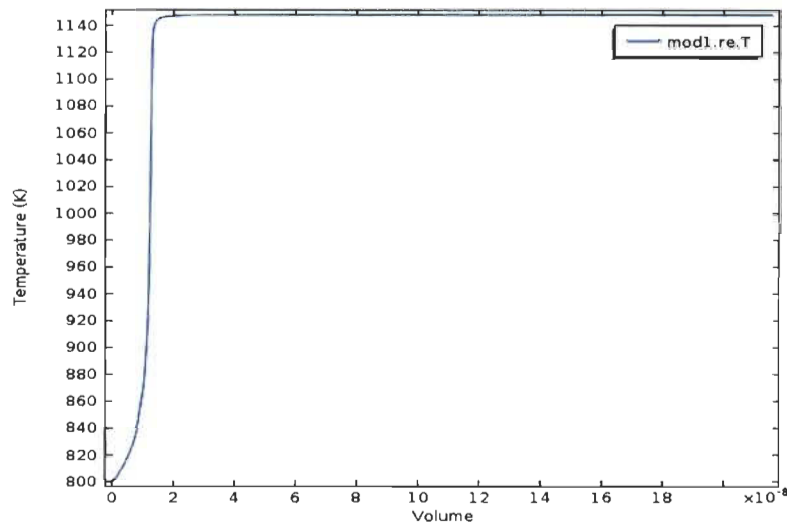


Figure 5.2 Plage de température applicable pour l'ignition du mélange en m^3

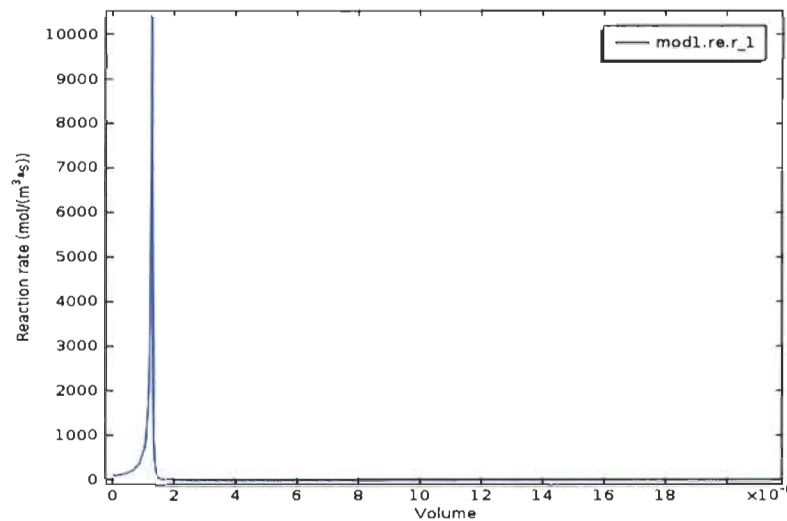


Figure 5.3 Évolution du taux de réaction du méthane en fonction du volume en m^3

Par la suite un couplage multi physique se fait à l'aide des modules, <<Transport and diluted species>>, <<Heat transfer>> et <<Laminar flow>> est réalisé, les équations régissant ces phénomènes complexes ne sont pas présentées ici et peuvent être retrouvées dans la littérature. Le couplage multi physique permet d'exploiter les données

préalablement calculées, de l'injecter dans le micro réacteur et d'étudier alors l'écoulement réactif dans l'espace de confinement.

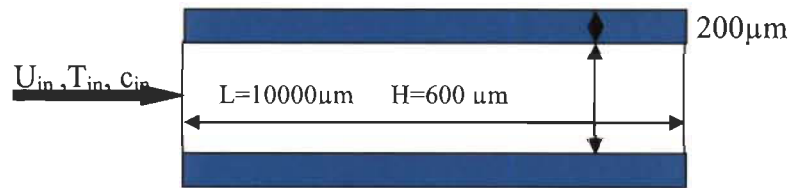


Figure 5.4 Micro réacteur tubulaire

L'étude a été faite avec un maillage non régulier et plus serré au niveau de l'entrée du réacteur où est supposée se développer la flamme. La température le long du centre du micro réacteur a été simulée avec 6000, 7200 et 9400 mailles. Mais tous les autres calculs ont été faits avec 6000 mailles étant donné qu'une grande différence n'a pas été observée. Le temps de calcul observé a été de 3 minutes.

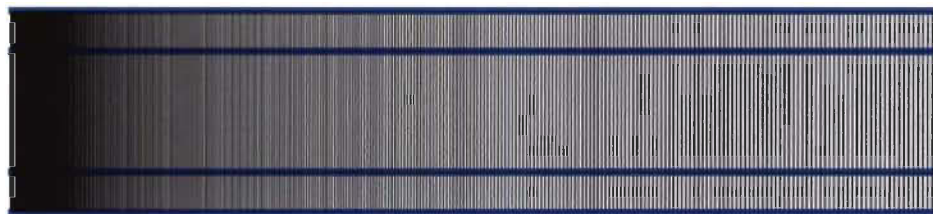


Figure 5.5 Maillage non régulier du micro réacteur

5.2.3 Résultats et discussion

Les simulations effectuées ont été dans les conditions d'une paroi adiabatique dans un premier temps pour uniquement produire une flamme de combustion mettant au préalable de côté toutes les causes d'instabilité, on a ainsi pu générer une micro flamme stable et homogène dans l'espace de confinement, la chaleur dégagée est propagée à travers les

parois, ces parois avec la chaleur emmagasinée permettra l'auto ignition des gaz frais et jouera ainsi un rôle de stabilisateur.

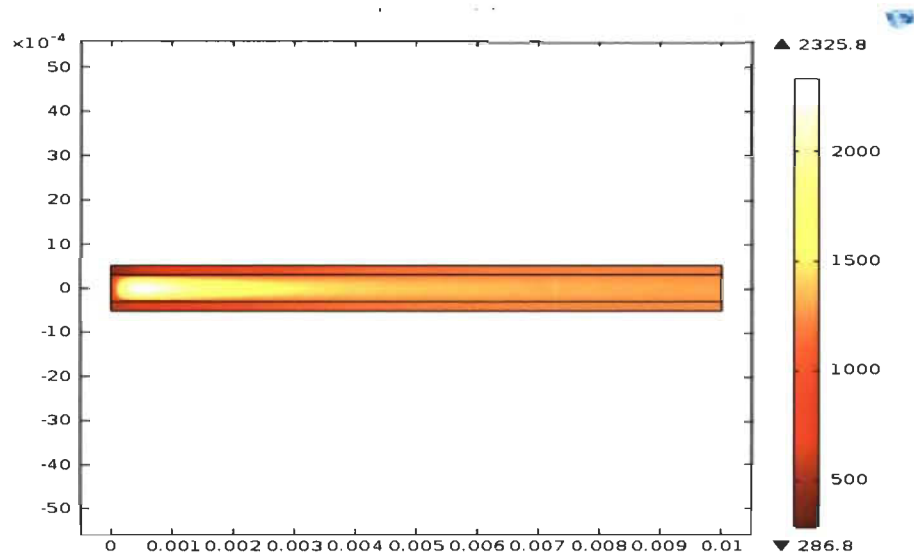


Figure 5.6 Évolution de la température dans le micro réacteur

Les réactifs entrent à la température de 300 K à une vitesse de 0,5 m/s, à la suite de son ignition par l'effet de parois pré chauffées, elle va passer rapidement à 2325 K et redescendre aux alentours de 1350 K, qui sera la température à laquelle les produits de combustion sortiront du réacteur. L'ordre de grandeur de la température de combustion est le même que celui obtenu par D.G. Vlachos et *al.* [58] qui ont simulé une flamme de forme tulipe stabilisée à l'entrée du micro réacteur avec une température de combustion de 2340 K. De même, on retrouve des similitudes avec le profil de température obtenu tel qu'illustré à la **figure 5.7**, où on obtient les produits de combustion qui sortent du réacteur à une température de 1600 K.

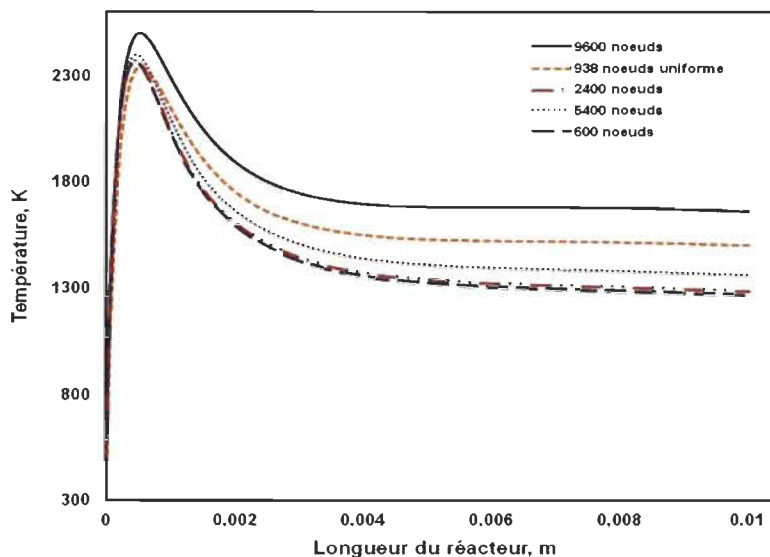


Figure 5.7 Distribution de la température le long du centre micro réacteur

5.2.4 Conclusion partielle

Le but recherché dans cette partie de l'étude était de vérifier les possibilités de simuler et de modéliser la combustion d'un mélange méthane/oxygène dans un micro réacteur, les résultats obtenus sont globalement en accord avec la littérature et montrent qu'il est possible de prédire certains paramètres, température, localisation de la flamme, échange de chaleur à travers les parois avec un modèle de cinétique chimique à une équation globale. Déjà en 1981 William a démontré que la cinétique chimique à une réaction globale pouvait décrire la dynamique de flamme ainsi que les réponses de la flamme et des perturbations externes.

On peut retenir que le logiciel Comsol 4.2a pourrait apporter une amélioration dans la modélisation des MPG et offrir une réelle alternative à l'utilisation des logiciels cités plus haut surtout dans des études 3D et dans l'optimisation des dimensions des micros réacteurs.

5.3 Effets du choix d'un modèle de cinétique chimique simplifiée à une équation globale sur la stabilité d'une micro flamme de pré mélange méthane/air.

5.3.1 Introduction

Le développement des appareils électroniques ces cinq dernières années, s'est accompagné de l'allégement du poids, de la diminution des dimensions, de la multifonctionnalité, ce qui nécessite une densité énergétique importante des batteries chargées de leur alimentation électrique. Malgré des avancées considérables, l'autonomie de ces batteries est limitée et constitue un handicap à l'utilisation continue de ces dispositifs. Les micros et nano systèmes de production d'énergie (MNPG) basée sur la combustion des hydrocarbures, constituent une alternative fiable pour l'alimentation électrique de certains appareils tels que, les laptops, les téléphones cellulaires, les robots, les micros fusées, les mini avions et les drones qui seront possiblement alimentés en énergie électrique par des microréacteurs[64]. Cependant malgré leur potentiel énergétique attractif, la mise en œuvre des dispositifs MNPG dans le processus de production et de maintien d'une flamme stable est délicate, parce que fortement influencée par l'interaction des parois et la réduction de l'espace de l'écoulement.

Dans tous les MNPG, la chambre de combustion est l'élément essentiel à travers lequel une micro flamme est développée permettant ainsi d'exploiter par divers processus thermodynamiques l'énergie contenue dans le mélange réactif utilisé. La propagation de la flamme dans les MNPG plus que dans les macros systèmes de combustion est un problème central. Les modèles de flamme théorique récents ont mis l'accent sur l'importance de la cinétique chimique détaillée pour la modélisation des flammes et apportés des

renseignements significatifs sur la structure des flammes. Cependant il y'a un besoin continu des modèles fiables et simples à une équation et plusieurs espèces, capables de reproduire le phénomène expérimental de propagation des flammes à travers des gammes d'opérations [93] pour faciliter le calcul numérique ou diminuer les temps de calcul.

Le développement des dispositifs de micro et nano combustion a grandement été favorisé par celui de la modélisation numérique. Cette évolution a permis de résoudre les problèmes de propagation d'une flamme auto entretenue dans des structures aux dimensions très réduites et d'améliorer les performances des dispositifs élaborés, permettant de reproduire de façon plus ou moins exacte les conditions pratiques de fonctionnement ou de comprendre la structure des micros flammes et leurs conditions de stabilité avec l'interaction parois micro flamme. Cependant, l'interaction de la cinétique chimique et le transport des réactifs sur la stabilité de la flamme reste encore à élucider[58]. Dans les études menées plusieurs mécanismes de cinétique ont été utilisés, des mécanismes détaillés avec plusieurs équations et plusieurs espèces chimiques [18, 19, 59, 99, 100], aux mécanismes réduits avec une seule équation globale[14, 22, 58]. Le choix de l'un de type de mécanismes cinétiques dépend des paramètres thermique ou chimique à analyser. Toute fois les deux mécanismes ont pour contrainte de conduire à des résultats proches des expérimentales ou observées.

La prise en compte du modèle cinétique est très importante dans un processus de modélisation et s'avère être un défi majeur à lever, tant le choix du modèle cinétique influencera le développement de la simulation. Par exemple, pour un modèle de cinétique simple à une équation et plusieurs espèces, les paramètres tels que le facteur pré exponentiel, les exposants de concentration doivent être déterminés; tout comme il est

possible d'exploiter les données de la littérature, dans chaque cas les résultats obtenus peuvent être loin de la réalité. Choisir le modèle cinétique influence à la fois la structure de la flamme, son positionnement dans le micro réacteur et dans un certain sens, le transfert de chaleur à travers les parois. Son influence est telle que trois problèmes rencontrés en micro et nano combustion, le flash back, le blowout et les hot spots peuvent être résolus par son exploitation adéquate.

Le flash back est la formation de la flamme sur les parois du brûleur et par conséquent cause l'extinction précoce de la flamme. Le blowout, qui voit la micro flamme se développer à l'extérieur du réacteur, provoque une perte d'énergie; ces deux problèmes sont influencés par la vitesse de réaction donnée par le modèle cinétique du taux de réaction et par la vitesse d'écoulement des réactifs, seulement il est établi qu'il existe un intervalle très réduit de vitesses (0,5-0,9 m/s) permettant une combustion auto entretenue du méthane dans une micro chambre de combustion [22, 58]. Selon que le temps de résidence (τ_R) est plus élevé que le temps chimique (τ_C) on fera face au flash back ou au blowout. Sur un plan pratique les « hot spot ou points chauds » [44] qui conduisent à une dégradation précoce des parois, parce que la flamme se localise en un point du micro réacteur, peuvent être évités avec une meilleure répartition spatiale de la flamme. Ce travail vise à étudier l'effet de la cinétique chimique sur la structure de la micro flamme à travers une réaction chimique globale selon des équations de vitesse de réaction respectant les modèles de Duterque, Mantel et d'Arrhenius. L'étude de sensibilité effectuée permettra d'éviter de calculer au préalable le facteur pré exponentiel, les coefficients exposants de concentration en utilisant directement un modèle de cinétique chimique à une équation préalablement élaboré.

Les performances des micros dispositifs de production d'énergie ont été fortement améliorées au cours de ces dix dernières années, cependant leur rendement reste faible, 20-30%[2], d'où la nécessité des efforts continus pour des améliorations technologiques, ce qui peut être obtenu par une meilleure compréhension des mécanismes de cinétique chimique qui contrôle le processus de combustion dans les différentes configurations des MNPG[101]. La compréhension des caractéristiques fondamentales de la combustion dans des dispositifs à échelle réduite est incontournable pour l'amélioration des MNPG et l'optimisation de leur conception[2]. La cinétique chimique est très importante dans l'analyse de la structure de la micro flamme. Il ressort de ce travail que le modèle de cinétique proposé par Duterque permet d'obtenir, avec un pré chauffage des réactifs froids, une structure de micro flamme dont les caractéristiques, la température et le positionnement peuvent permettre un meilleur rendement comparativement au rendement actuel des MPG.

5.3.2 Méthode

Un pré mélange méthane/air alimente un micro réacteur tubulaire modélisé en 2D, dont les dimensions sont : hauteur d'entrée des réactifs $600\mu\text{m}$, longueur du réacteur $10000\mu\text{m}$, tel que représenté à la **figure 5.8(a)**, avec des parois en alumina d'épaisseur $200\mu\text{m}$. La vitesse d'entrée des réactifs est de $0,5\text{ m/s}$. Tous les calculs effectués ont été faits à l'aide du logiciel COMSOL 4.2a [102] . L'origine est fixée au centre de l'entrée du micro réacteur, l'abscisse x décrit l'axe ou la direction de l'écoulement en amont du fluide réactif, tandis que y représente la distance verticale des plaques parallèles. Les hypothèses sont telles que la composante de la vitesse tourbillonnante est nulle, ce qui permet uniquement une étude symétrique par rapport au centre du micro réacteur. Seule la moitié du micro réacteur sera alors considérée dans les calculs, permettant ainsi de diminuer le temps de

calcul. De plus on considérera qu'on n'a pas d'effets de Dufour[103], pas de rayonnement de gaz[14, 58], pas de travail fait par des forces visqueuses et de pression, l'étude sera réalisée à l'état stationnaire.

L'étude de l'écoulement du fluide réactif se fait en deux étapes, la première à l'aide du module « Réaction Engineering » qui permet de définir la cinétique chimique choisie, l'analyse de la combustion dans un réacteur modèle; il met en place toutes les données thermodynamiques et de transport pour réaliser la combustion dans un réacteur pratique en occurrence celui de la **figure 5.8** (modèle plug flow). La deuxième étape consiste au couplage multi physique du module « Réaction Engineering » aux modules physiques, « Transport and Concentrated Species », « Heat Transfert et Laminar Flow », qui définissent respectivement le transport d'espèces, le transfert de chaleur dans le fluide et à travers les parois et l'écoulement laminaire.

5.3.2.1 Le module Reaction Engineering

Le module Reaction Engineering permet l'étude de la cinétique chimique dans un modèle de réacteur piston ou « plug flow », il met en place le mécanisme de cinétique chimique que nous définissons au préalable, il permet de calculer les paramètres thermodynamiques et de transport au travers des équations 5.4, 5.5, 5.6. Dans cette étude la cinétique chimique simplifiée à une équation et cinq espèces a été testée.



Le terme source est donné, par les équations de la constante cinétique et de la vitesse de réaction, soit :

$$k^f = AT^n \exp \left(-\frac{E_a}{R_g T} \right) \quad 5.4$$

$$R_j = k^f \prod_{i=v}^Q c_i^v \quad 5.5$$

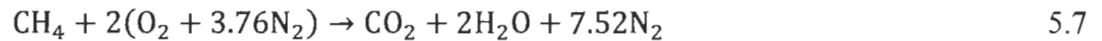
De façon pratique, il est possible d'écrire le taux de réaction par l'équation 4

$$R_{CH_4} = A * \exp \left(-\frac{E_a}{R_g T} \right) c_{Fuel}^a c_{Oxydant}^b \quad 5.6$$

Ici R_j, R_{CH_4} représentent le taux de réaction de l'espèce j, dans notre cas le méthane ($\text{mol/m}^3/\text{s}$), k^f est la constante du taux de réaction, A est le facteur pré exponentiel E_a est l'énergie d'activation (J/mol), R_g est la constante des gaz parfaits (8.314 J/mol/K), T est la température (K), c la concentration (mol/m^3), a et b représentent l'ordre de la réaction.

Les conditions dans lesquelles la combustion va se faire sont alors définies et les données obtenues sont la température permettant l'ignition du mélange et la qualité de chaleur dégagée.

Dans le cas de la combustion du méthane, on a



L'équation de cinétique chimique simplifiée à une étape, qui définit le taux de réaction pour un mélange stœchiométrique est;

$$R = A * \exp \left(-\frac{E_a}{R_g T} \right) c_{Fuel}^1 c_{Oxydant}^2 \quad 5.8$$

Dans l'équation 5.8, l'inconnue à définir est le facteur pré exponentiel A s'obtient à travers une simulation comparative entre la vitesse de la flamme, celle de l'écoulement et les données expérimentales[104]. De plus Westbrook, C. K. et F. L. Dryer [93] montrent

que, pour que la flamme se forme à l'intérieur du réacteur, les coefficients a et b ne peuvent pas être ceux définis dans l'équation 5.8; ils doivent plutôt respecter les conditions $a \ll 1$ et $0 < b \ll 2$. Norton, D. G. et D. G. Vlachos[58] ont défini la cinétique de la micro flamme pré mélangée du méthane/air suivant la méthode préconisée par Westbrook et Dryer à travers l'équation suivante 5.9. Le tableau 5.1 présente un ensemble de modèles de cinétique réduite à une équation globale applicable pour un certain nombre de combustibles.

L'équation 5.9 est le modèle de cinétique chimique utilisé dans les travaux de D.G. Northon et D.G. Vlachos, on peut s'apercevoir que le coefficient de puissance du combustible est modifié.

$$R(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 2.119 \cdot 10^{11} \exp\left(\frac{-2.03 \cdot 10^5}{R.T}\right) c_{\text{CH}_4}^{0.2} \cdot c_{\text{O}_2}^{1.3} \quad 5.9$$

En 2013, Gutkowski Artur[105] établit un modèle de cinétique chimique pour faire l'analyse numérique de l'effet des méthodes d'ignition sur le comportement de la flamme de propane durant son passage au travers d'une contraction soudaine proche des conditions d'extinction suivant la méthode préconisée par Westbrook et Dryer [105] :

$$R(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 1.686 \cdot 10^{10} \exp\left(\frac{-1.256 \cdot 10^8}{R.T}\right) c_{\text{C}_3\text{H}_8}^{0.1} \cdot c_{\text{O}_2}^{1.65} \quad 5.10$$

Tableau 5.1 Paramètres de taux de réaction donnant de bons résultats entre les limites de flammabilité expérimentales (ϕ'_L and ϕ'_R) et celles calculées ϕ_L and ϕ_R . Unités des paramètres -cm-sec-mole-kcal-Kelvin[105]

Fuel	A	Ea	a	b	ϕ'_L	ϕ_L	ϕ'_R	ϕ_R
CH ₄	1.3×10^8	48.4	- 0.3	1.3	0.5	0.5	1.6	1.6
CH ₄	8.3×10^5	30.0	- 0.3	1.3	0.5	0.5	1.6	1.6
C ₂ H ₆	1.1×10^{12}	30.0	0.1	1.65	0.5	0.5	2.7	3.1
C ₃ H ₈	8.6×10^{11}	30.0	0.1	1.65	0.5	0.5	2.8	3.2
C ₄ H ₁₀	7.4×10^{11}	30.0	0.15	1.6	0.5	0.5	3.3	3.4
C ₅ H ₁₂	6.4×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	3.6	3.7
C ₆ H ₁₄	5.7×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.0	4.1
C ₇ H ₁₆	5.1×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.5	4.5
C ₈ H ₁₈	4.6×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₈ H ₁₆	7.2×10^{12}	40.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₉ H ₂₀	4.2×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₁₀ H ₂₂	3.8×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.2	4.5
CH ₃ OH	3.2×10^{12}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.1	4.0
C ₂ H ₅ OH	1.5×10^{12}	30.0	0.15	1.6	0.5	0.5	3.4	3.6
C ₆ H ₆	2.0×10^{11}	30.0	-0.1	1.85	0.5	0.5	3.4	3.6
C ₇ H ₈	1.6×10^{11}	30.0	-0.1	1.85	0.5	0.5	3.2	3.5
C ₂ H ₄	2.0×10^{12}	30.0	0.1	1.65	0.4	0.4	6.7	6.5
C ₃ H ₆	4.2×10^{11}	30.0	-0.1	1.85	0.5	0.5	2.8	3.0
C ₂ H ₂	6.5×10^{12}	30.0	-0.2	1.25	0.3	0.3	>10.0	>10

Les tableaux suivants présentent le type de cinétique chimique utilisé dans des travaux en micro combustion et met en exergue certaines modifications qui ont été apportées par rapport aux paramètres proposés dans le **tableau 5.1**.

Tableau 5.2 Une vue d'ensemble des études numériques faites à l'aide d'une cinétique chimique simplifiée ou détaillée avec des modèles géométriques simples.

Fuel-Oxidizer	Combustor geometry	Combustor size	Reaction mechanism	References
CH ₄ /air Fuel lean	Plane channel	H = 1mm, L = 10m	Detailed gas-phase and surface reactions	[100]
C ₃ H ₈ /air	Parallel plates	H=600μm, L = 10mm	One-step global reaction	[14]
CH ₄ /air ϕ = 1	Parallel plates	H=600μm, L = 10 mm	One-step global reaction	[8]
H ₂ /air ϕ = 1	Cylindrical chamber	d=0.1mm	Detailed gas-phase reactions	[18]
CH ₄ /air, C ₃ H ₈ /air ϕ = 1	Parallel plates	H=600μm, L = 10mm	One-step global reaction	[21]
H ₂ /air ϕ = 0.5	Cylindrical tube and parallel plates	d=0.4-0.8mm	Detailed gas-phase reactions	[49]
CH ₄ /air ϕ = 0.9	Cylindrical tube and parallel plates	d=1-2mm	Detailed gas-phase reactions	[50]
H ₂ /air	Parallel disk	H=0.15-0.3mm	One-step global reaction	[106]
CH ₄ /air ϕ = 0.9	Cylindrical tube with sudden contraction	d=6.0-1.6mm	One-step global reaction	[7]

Tableau 5.3 Paramètres de taux de réaction déjà utilisés pour la simulation d'une micro flamme de combustion

Fuel	A	Ea (J/kgmol/K)	a	b	Conform with Westbrook and Dryer's work	Reference
CH ₄	2.119x10 ¹¹	2.027x10 ⁸	0.2	1.3	a modified	[2, 20, 21]
CH ₄		2.027x10 ⁸	0.2	1.3	A and a modified	[105]
C ₃ H ₈	4.836x10 ⁹	1.256x10 ⁸	0.1	1.65	A modified	[13, 20, 21]
C ₃ H ₈	1.686x10 ¹⁰	1.256x10 ⁸	0.1	1.65	A modified	[104]
H ₂					Modeled	[25]

Quoique fortement démontré par Westbrook et Dryer[93], la recherche des paramètres tels que le facteur pré exponentiel, l'énergie d'activation, des ordres partielles de réaction demande des calculs préalables qui dépendent de plusieurs facteurs dont la composition du mélange du fluide réactif, les propriétés de transport du fluide et la dimension du maillage utilisé[105]. Le **tableau 5.1** présente tous ces différents paramètres par rapport au combustible utilisé. Cependant d'autres modèles d'équations sont choisis pour étudier les flammes dans une large gamme de vitesse d'écoulement de réactifs. Ici l'analyse de sensibilité de la flamme est faite par rapport aux équations 5.11 5.12 et 5.13 qui décrivent les modèles de Mantel, Duterque et de Fernandez-Tarrazo.

5.3.2.2 Choix du modèle simplifié du mécanisme cinétique

La modélisation de la cinétique chimique est devenue un outil d'analyse des systèmes de combustion de plus en plus utilisé. Des progrès significatifs ont été réalisés ces dix dernières années[101], mais il est largement connu que la mise en place d'un mécanisme de cinétique détaillé doit donner des résultats proches de la réalité expérimentale. Li, J., S. Chou, et *al.* ont utilisé un mécanisme de cinétique chimique détaillé de 25 équations et 16 espèces pour faire l'étude numérique d'une micro flamme de pré mélange méthane/air [107]; pour un réacteur de même forme, Norton, D. G. et D. G. Vlachos ont utilisé un mécanisme simplifié à une équation et cinq espèces; les résultats obtenus dans ces différentes études présentent des différences au niveau de la température de combustion du mélange de l'ordre respectivement de 1940 K et 2323 K ainsi que celle de sortie des produits de combustion qui sont respectivement de 1800 K et 1680 K . Cependant, les mécanismes des réactions chimiques détaillées dans les réactions de combustion sont assez compliqués [108], particulièrement quand la formation des polluants tels que les NO_x est

considérée. Pour les modèles numériques des chambres de combustion en deux ou trois dimensions, le calcul nécessite de la place mémoire et un temps de convergence important, sans que la pertinence d'un tel choix de contraintes soit justifiée[109]. De plus, dans plusieurs études le nombre très important d'informations que peut apporter l'utilisation d'un mécanisme détaillé de cinétique chimique n'est pas nécessaire. Un mécanisme de cinétique chimique simplifié à une ou plusieurs équations, selon les informations recherchées serait suffisant[93].

Duterque, et, *al.*[110] ont proposé 1-2 réactions globales, Peters[111], Hutman, et *al.*[94], Jones et Lindstedt [112] ont opté pour plusieurs réactions globales. Edelman et Fortune[113], Eldeman et Harsha[114] ont préféré une réaction quasi globale comportant une réaction globale et plusieurs réactions élémentaires.

Eduardo Fernandez-Tarrazo et *al.* [xx] ont étudié l'utilisation du modèle de la cinétique chimique dite d'Arrhenius à une étape irréversible pour décrire la combustion des hydrocarbures partiellement pré mélangés.

Il sera donc question d'examiner la sensibilité d'une micro flamme pré mélangée de méthane/air à travers trois modèles de cinétique chimique à une équation soit celui de Mantel, Duterque et d'Arrhenius définis respectivement par les équations 5.11, 5.12 et 5.13 comparativement au modèle de cinétique chimique à une équation de Norton, D. G. et D. G. Vlachos et au modèle à une cinétique chimique détaillée de J. Li et *al.* [107]. Les modèles cinétiques, choisis par rapport à ceux cités plus haut, l'ont été parce qu'ils sont non seulement les plus utilisés dans la littérature, mais surtout parce qu'ils sont simples.

$$R(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 9.1 \times 10^{19} \exp\left(\frac{-1.045 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) C_{\text{CH}_4}^1 \cdot C_{\text{O}_2}^2 \quad 5.11$$

$$R(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 6.9 \times 10^8 \exp\left(\frac{-2.03 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) C_{\text{CH}_4}^{0.7} \cdot C_{\text{O}_2}^{1.3} \quad 5.12$$

$$R(\text{mol}/\text{m}^3\text{s}) = 1.50 \times 10^{13} \exp\left(\frac{-1.321 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) C_{\text{CH}_4} \cdot C_{\text{O}_2} \quad 5.13$$

5.3.2.3 Modèle numérique

Les modules suivant seront combinés :

- Le module Laminar flow : décrit l'écoulement laminaire du fluide le long du réacteur. Il traduit les équations de continuité et de quantité de mouvement (5.14,15).
- Le module Heat transfer in the fluid : exprime le transfert de chaleur par les réactifs le long du réacteur. Il traduit l'équation de conservation d'énergie (5.16).
- Le module Transport and concentrated species: permet de calculer le transport d'espèces en déterminant les coefficients de transport. Il traduit l'équation de conservation de transport d'espèces (5.17, 5.18).

Les équations de continuité, de quantité de mouvement, d'énergie et de concentration d'espèces ainsi définies sont les suivantes :

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad 5.14$$

$$\rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \nabla \cdot \left[p \mathbf{I} + \rho \left(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T - \frac{2}{3} \mu(\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{I} \right) \right] + \mathbf{F} \quad 5.15$$

$$\rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad 5.16$$

$$\nabla \cdot \mathbf{j}_j + \rho(\mathbf{u} \cdot \nabla) \omega_j = R_j \quad 5.17$$

$$j_j = - \left(\rho D_j^m \nabla \omega_i + \rho \omega_i D_j^m \frac{\nabla M_n}{M_n} + D_j^T \frac{\nabla T}{T} \right) \quad 5.18$$

$$Q = -H_{sr} R_j \quad 5.19$$

$$D_j^m = \frac{1 - \omega_i}{\sum_{k \neq i} \frac{x_k}{D_{jk}}} \quad 5.20$$

$$M_n = \left(\sum_i \frac{\omega_i}{M_i} \right)^{-1} \quad 5.21$$

$$\rho = \frac{P}{RT} M_n \quad 5.22$$

Dans ces équations, ρ est la masse volumique des réactifs (kg/m^3), μ la viscosité dynamique (Pa.s), k la conductivité thermique ($\text{W/m}^2\text{K}$), C_p la chaleur massique, M_n la masse molaire de chaque espèce (kg/mol), p la pression (Pa). H_{sr} l'enthalpie de formation des espèces (J/mol), w_i la fraction massique et D_{jk} la multi composante de diffusivité de Maxwell-Stefan.

Les équations régissant l'écoulement réactif sont discrétisées par la méthode des éléments finis et résolues par Comsol 4.2a. Les équations sont implicitement résolues avec un solveur 2D distinct utilisant une méthode de sous relaxation; il résout tout d'abord l'équation de quantité de mouvement, puis celle de continuité suivie d'une mise à jour de la pression et du débit massique. Les équations de continuité, de quantité de mouvement, d'énergie et de transport d'espèces sont par la suite abordées. Les itérations sont contrôlées et surveillées jusqu'à ce qu'une solution convergente soit obtenue. Le critère de convergence pour les résidus est fixé à 1×10^{-3} pour l'équation de continuité, pour la

vitesse, l'énergie et pour la concentration d'espèces. La masse volumique du gaz est calculée par la loi des gaz parfaits. La viscosité des gaz, la chaleur spécifique et la conductivité thermique sont estimées par la moyenne pondérée de la fraction massique des espèces.

Les conditions limites sont telles qu'à l'entrée du réacteur il existe un profil de vitesse linéaire $u_0 = 0,5 \text{ m/s}$; le choix de cette vitesse se justifie par le fait qu'elle soit proche de la vitesse de combustion du méthane ($0,45 \text{ m/s}$); de plus elle constitue un paramètre de stabilité pour une flamme produite dans un micro réacteur de hauteur d'entrée des réactifs de $600 \text{ }\mu\text{m}$ [22]; la température uniforme d'entrée du micro réacteur est de 300 K . La fraction massique $w_{\text{CH}_4} = 0.055$, correspondant à un ratio équivalent du combustible de $\phi = 0.9$, le choix de la composition est dicté par le fait que, la distance d'extinction pour une composition stœchiométrique est plus petite que celle des mélanges pauvres [50, 105]; à l'interface fluide solide la condition de non glissement est imposée ($u = 0 \text{ m/s}$); le flux de chaleur est calculé à partir de la loi de Fourier. La continuité dans la température et le flux de chaleur fait le lien entre la phase gazeuse et solide ; la température initiale de 1600 K est imposée sur tout le domaine de calcul à la fois sur le domaine d'écoulement du fluide réactif que celui de la paroi solide pour favoriser l'ignition du mélange réactif. Dans nos calculs la paroi externe du micro réacteur est supposée isolée, on applique la condition limite de symétrie pour faire le calcul que d'un seul côté, à la sortie du micro réacteur la pression atmosphérique est imposée. Dans les simulations, un maillage non régulier est utilisé avec plus de nœuds centrés à l'entrée du réacteur et tout autour de la zone de réaction. Les calculs ont été réalisés avec 4320 nœuds soit $(10+8) \times 240$ (**figure 5.8 (b)**).

5.3.3 Résultats et discussion

5.3.3.1 Cadre de référence

Deux articles portant sur la simulation numérique d'une micro flamme pré mélangée méthane/air l'une avec un modèle cinétique détaillé et l'autre avec un mécanisme cinétique à une équation globale ont été choisis comme cadre de référence afin de comparer et d'évaluer la pertinence des résultats des simulations.

J. Li et *al.* [107] ont fait l'étude numérique d'une flamme de pré mélange méthane/air à travers un micro réacteur de forme circulaire de rayon de 1mm avec une cinétique chimique détaillée 25 équations et 16 espèces, le réacteur utilisé est quasi équivalent à celui de notre étude si on tient compte de la relation qui lie les deux configurations $H = 0.65.d$ [50]. Les résultats obtenus montrent une flamme stable de forme convexe, la température d'entrée du fluide réactif est de 300 K, la vitesse initiale de $u_0 = 0.5 \text{ m/s}$, la température initiale de préchauffage est de 1600 K. Les observations de Li et *al.* ont été les suivantes : L'analyse du profil de température permet de constater que le fluide parcourt une distance de 0.008m à la température 300K avant de se réchauffer et d'atteindre la température d'ignition à 1200 K; la température maximale atteinte est de 1900 K à $x = 0.004 \text{ m}$ et demeure constante le long du reste du micro réacteur. On peut retenir de cette étude que la cinétique chimique détaillée permet d'obtenir une température de combustion inférieure à la température adiabatique du méthane.

Pour étudier les caractéristiques de combustion et de stabilité d'une flamme pré mélangée méthane air à l'échelle microscopique, D.G. Norton et D.G. Vlachos proposent

une étude numérique menée avec le logiciel Fluent[58]; le réacteur qu'ils utilisent est de la même forme que celui utilisé dans cette étude et est illustré à la **figure.5.8(a)**.

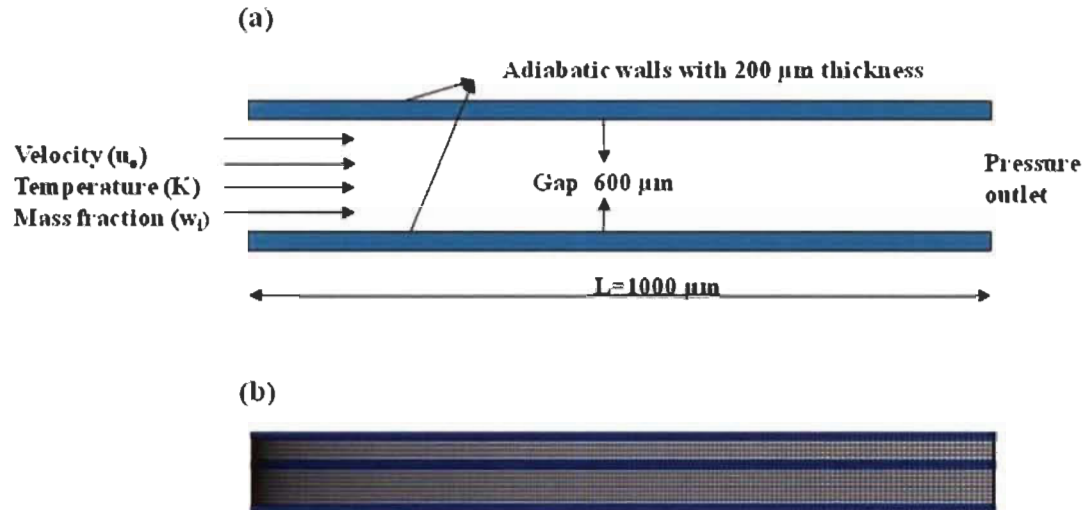


Figure 5.8 (a) Vue du micro réacteur et quelques conditions frontières ; **(b)** Maillage du domaine d'écoulement du fluide réactif.

La température initiale de préchauffage pour toutes les simulations effectuées était de 1000 K[58] afin de permettre l'ignition du mélange réactif. Une flamme stable dans les conditions de combustion pauvre ($\phi = 0.9$) et des vitesses d'entrée de réactifs 0.3-0.8 m/s ont été testées.

Les observations de Norton et de Vlachos ont été les suivantes : La flamme simulée pour plusieurs conditions de fonctionnement atteignait un maximum de 2280 K à une distance $x = 0.0018$ m de l'entrée du réacteur, quoique la température atteinte soit surestimée parce que supérieure à la température adiabatique du méthane; elle ne constitue pas une limite du modèle cinétique utilisé. La température des produits de combustion évaluée était de 1500 K à la sortie du réacteur, tandis que celle des parois allait de 1000 K

à l'entrée du réacteur, avec un pic de 1600 K atteint au niveau de la zone de réaction; par la suite on pouvait observer une légère baisse de la température jusqu'à 1500 K à la sortie.

Il ressort de cette étude que le modèle cinétique à une équation globale permet la simulation d'une micro flamme et peut conduire à une analyse fiable des paramètres de fonctionnement d'un micro réacteur, surtout si on se limite à l'analyse des phénomènes de transfert de chaleur.

5.3.3.2 Effets de la cinétique chimique réduite sur la structure de la micro flamme

Pour tous les trois modèles de cinétique chimique simulés, une flamme stable a été observée et les formes sont totalement différentes des unes des autres. La **figure 5.9 (a)** montre la flamme obtenue avec le modèle de Mantel; on y observe que la flamme se développe à l'entrée du micro réacteur, sa forme est particulière et est quasiment convexe.

Le mécanisme de propagation des flammes entre des plaques parallèles a été étudié par Hackert et *al.* [115] qui présentent des flammes en forme de tulipe, cependant on retrouve la même forme convexe de flamme dans [107]. L'épaisseur de la flamme développée peut être estimée à 0.001m, qui est dans l'ordre de grandeur de la valeur de l'épaisseur des flammes produites avec des combustibles gazeux. La **figure 5.9 (b)** présente aussi le taux de conversion du méthane; il ressort que tout le méthane est consommé dans la zone de réaction, la fraction massique à l'entrée de 0.055 devient nulle après seulement 0.002m. Le fait que les ordres partiels de réaction des concentrations respectent les coefficients stœchiométriques de la réaction de combustion du méthane peut expliquer l'oxydation totale du méthane.

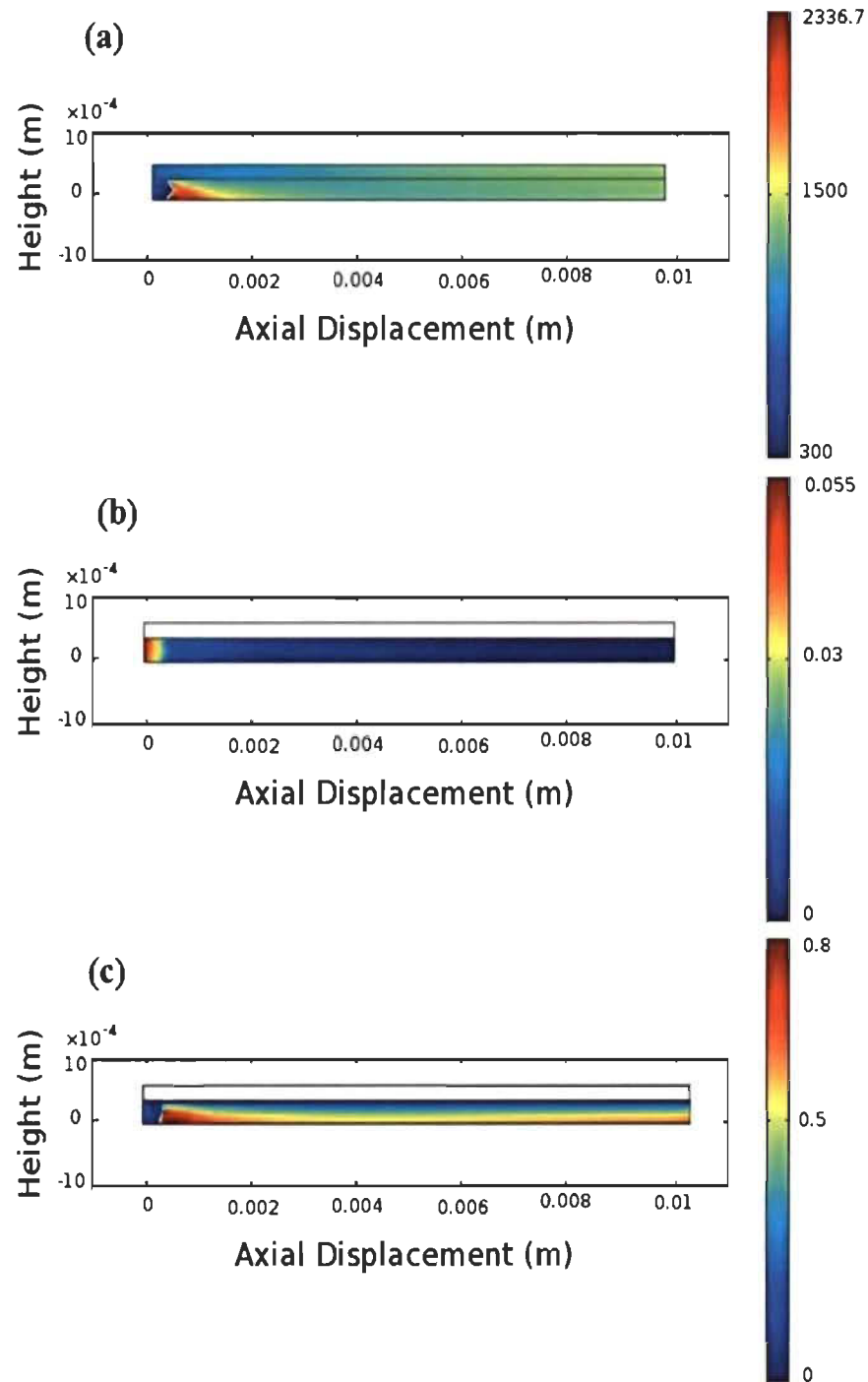


Figure 5.9 Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Mantel.

La **figure 5.10** (b) présente le taux de réaction qui montre que la combustion a été rapide, car malgré l'épaisseur faible de la flamme, la combustion est complète dans le micro réacteur.

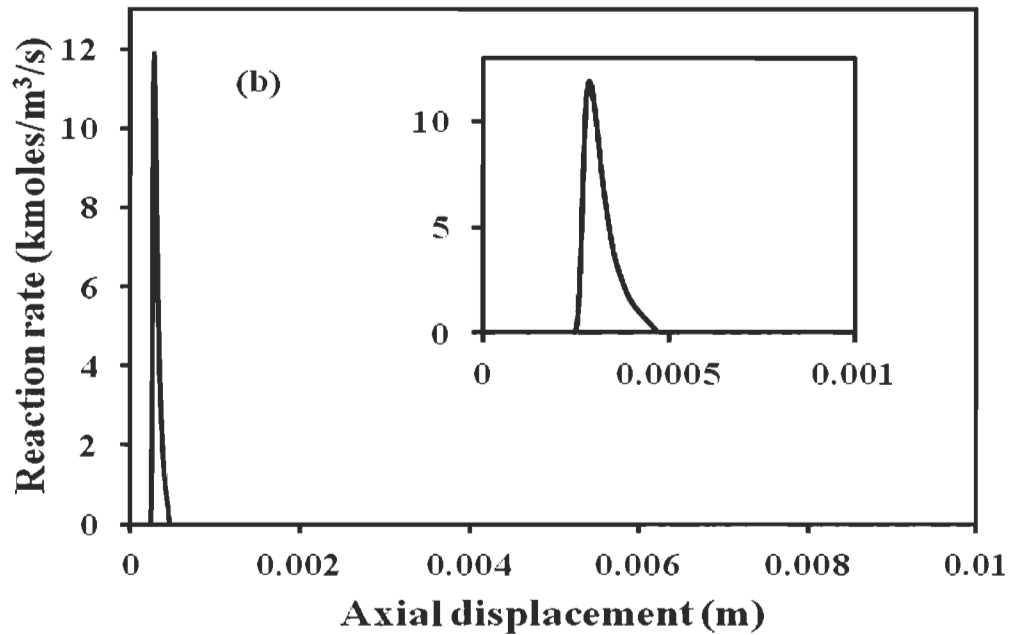


Figure 5.10 Profil du taux de réaction à l'aide du modèle cinétique de Mantel

La **figure 5.12(a)** présente la flamme simulée avec le modèle de cinétique chimique de Duterque, dans ce cas la flamme commence à prendre forme après 0.001m et donc beaucoup plus tardivement que celle simulée avec le modèle de Mantel; elle est de forme arrondie, la zone de réaction est élargie et l'épaisseur de la flamme est estimée à 0.003m. Cet élargissement de la zone de réaction peut s'expliquer par l'accumulation du fluide qui à l'entrée du réacteur. Du fait que la réaction ne soit pas instantanée, le mélange réactif brûle beaucoup plus longtemps comme peut le confirmer le profil du taux de réaction à la **figure 5.11**.

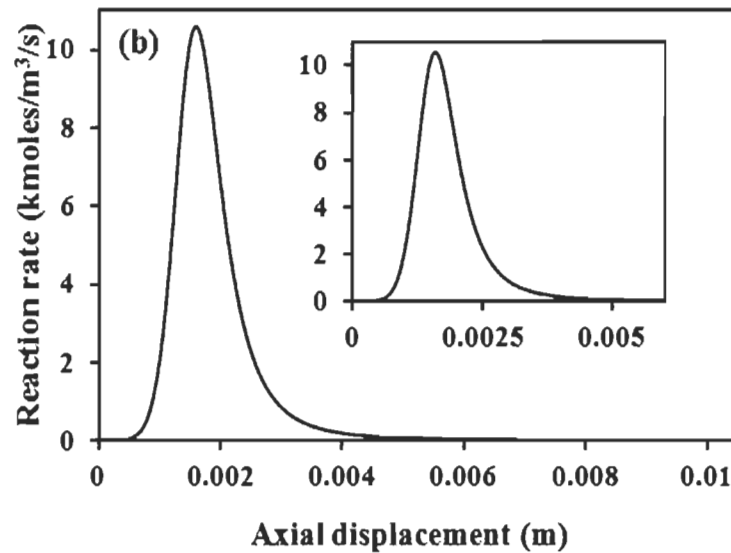


Figure 5.11 Profil du taux de réaction à l'aide du modèle cinétique de Duterque

La **figure 5.12 (b)** présente la conversion du méthane; on peut noter ici que si le méthane brûle complètement, le phénomène de blowout peut être à redouter ici.

La **figure 5.13 (a)** présente la flamme simulée à l'aide du modèle cinétique chimique d'Arrhenius; la combustion dans ce cas est très rapide et survient presque à l'entrée du réacteur (0,0005m), avec une extinction quasi instantanée par la suite. Le risque de flash back est élevé car la zone de réaction est relativement très étroite. Elle présente une forme alvéole avec une illumination autour d'un point très chaud au centre de l'entrée du micro réacteur; par conséquent ce hot spot laisse présager des risques de détérioration de la paroi dans cet espace.

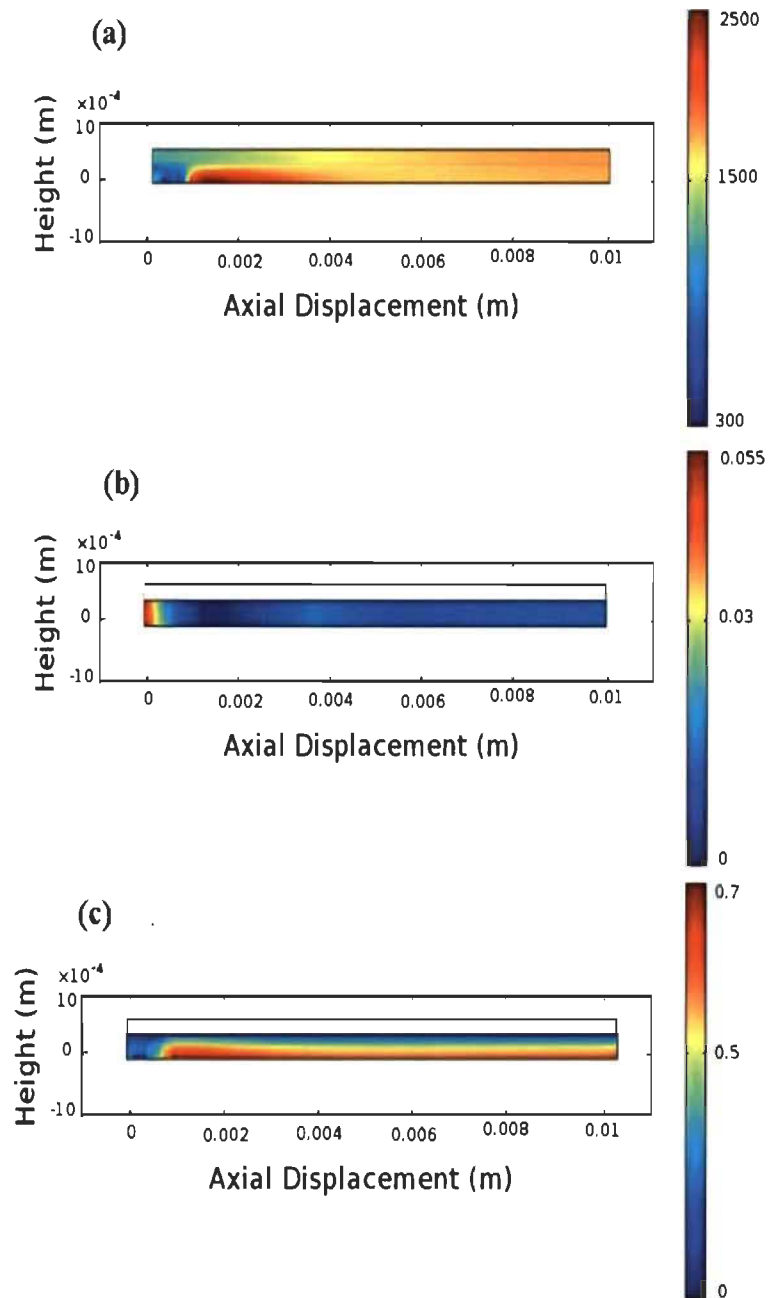


Figure 5.12 Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Duterque.

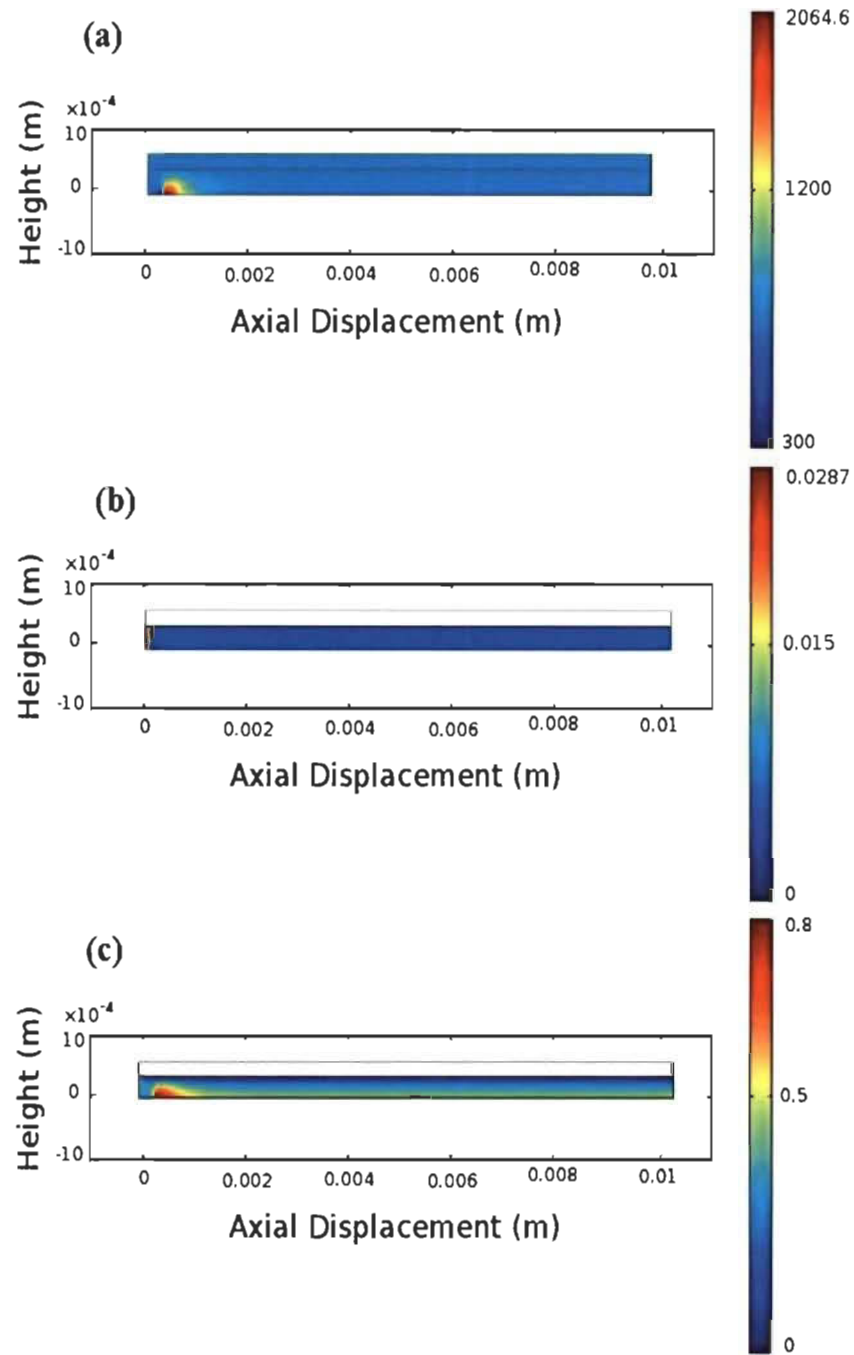


Figure 5.13 Profil de la flamme et distribution de température à la fois dans le domaine d'écoulement et la paroi (a), fraction massique du méthane (b), Vitesse axiale d'écoulement du fluide (c) à l'aide du modèle de Arrhenius

La **figure 5.13(b)** montre que la conversion du méthane est partielle, fortement incomplète. Le profil du taux de réaction confirme que la réaction se déroule sur une mince couche. Westbrook et Dryer [93] prédisaient qu'à priori, une combustion avec un tel modèle n'est pas possible. Cependant des années plus tard, ils démontraient qu'avec une combustion pauvre et dans le cas des macros chambres de combustion un tel modèle pouvait être utilisé, ce qui ne semble pas le cas en micro combustion, tout au moins dans la configuration du modèle à deux plaques parallèles simulé.

Il est à noter que la combustion dans les deux cas de référence a généré des structures de flamme différentes, la flamme produite par J. Li et *al.* [107] a une forme similaire à celle simulée avec le modèle de Mantel, tandis que celle produite par D.G. Norton et D.G. Vlachos [58] a une forme proche de celle produite à l'aide du modèle d'Arrhenius. De plus, le retard observé dans l'ignition de la flamme développée avec le modèle de Duterque ne devrait l'être, car il est connu que la combustion avec un modèle cinétique réduit se produit précocement par rapport à celle avec une cinétique chimique détaillée; la raison de cette différence dans l'ignition du mélange des réactifs est que la chimie dans le cas des modèles cinétiques réduits est infiniment abrupte[104, 116]. On peut déduire de la structure de flamme obtenue que le temps chimique τ_c dans le modèle de Mantel pourrait sensiblement égaler le temps d'écoulement ou temps de résidence τ_R , ce qui expliquerait la formation de la flamme ancrée à l'entrée du micro réacteur. Dans le cas des modèles cinétiques de Duterque et d'Arrhenius le temps chimique τ_c serait respectivement inférieur et supérieur au temps de résidence τ_R , d'où l'étirement de la flamme dans le premier cas et l'extinction subite dans le second.

Il est clair, au vu des simulations effectuées, que la cinétique chimique réduite à une équation globale influence fortement la structure de la flamme et le déroulement de la combustion dans un micro réacteur.

5.3.3.3 Effets de la cinétique chimique sur la température du centre le long du micro réacteur

La **figure 5.14** montre le profil de température obtenu avec le modèle cinétique de Mantel; le mélange réactif entre à 300 K; après 0,0005m la température commence à augmenter au contact de la paroi préalablement préchauffée à 1200 K. Une fois que la température atteint approximativement 1250 K, l'ignition du mélange réactif est enclenchée, la combustion se produit très rapidement et la température atteint un maximum avec un point d'inflexion à 2350 K, supérieur à la température adiabatique du méthane qui est de l'ordre de 2130 K pour un ratio équivalent de $\phi=0,9$. La chaleur produite se propage le long du micro réacteur ainsi qu'aux parois; la température chute à partir de $x = 0,0025\text{ m}$ pour se stabiliser 1500 K jusqu'à la sortie des produits de combustion. Le profil de température est quasi similaire à celle de la flamme simulée D.G. Norton et D.G. Vlachos [58].

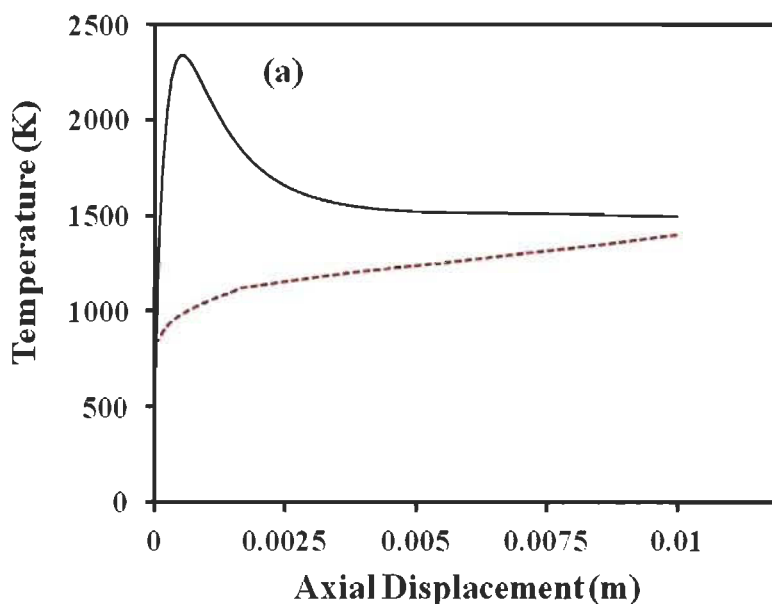


Figure 5.14 Profil de température de la flamme le long du réacteur (trait plein), profil de température des parois (traits pointillés) à l'aide du modèle de Mantel.

La **figure 5.15** montre l'évolution de la température le long de l'axe du micro réacteur simulée à l'aide du modèle de cinétique chimique de Duterque; on observe une évolution en dent de scie de la température à l'entrée du micro réacteur, ce qui laisse supposer un retard à l'ignition du mélange réactif. Ainsi la température des réactifs froids entrant demeure à 300 K sur une distance avoisinant 0,0008 m; par la suite la température va augmenter jusqu'à 1500 K où se produira l'ignition; la combustion complète se produira à $x = 0,0015$ m où la température de la flamme atteindra son maximum à 2500 K. L'extinction de la flamme aura lieu quasiment à la moitié du micro réacteur alors que la température est encore à 1600 K; dès lors la température reste constante à cette valeur jusqu'à la sortie des produits de combustion. Il est clair que les valeurs de la température dans ce cas sont fortement surestimées, quoique la température des produits de combustion dans le cas des simulations effectuées par J. Li et *al.* [107] sont du même ordre de grandeur.

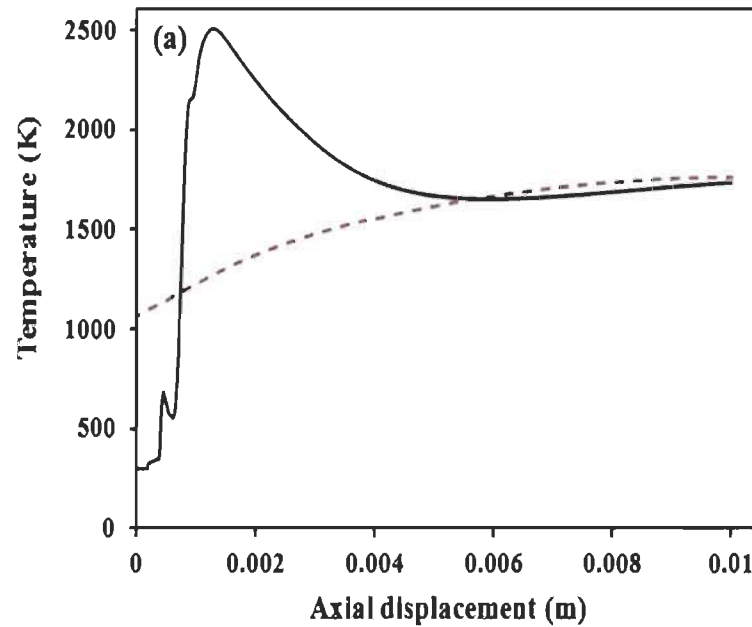


Figure 5.15 Profil de température de la flamme le long du réacteur (trait plein), profil de température des parois (traits pointillés) à l'aide du modèle de Duterque.

La **figure 5.16** présente l'évolution de la température le long du centre du micro réacteur avec le modèle de cinétique chimique dit d'Arrhenius. La température du fluide réactif à l'entrée est de 300 K et subit une évolution abrupte et précoce quasiment dès l'entrée; la température maximale est rapidement atteinte à 2100 K, à peine atteinte elle chute drastiquement à 800 K d'où la forme d'une pointe du profil de température. Cette température stabilisera à cette valeur jusqu'à la sortie du micro réacteur.

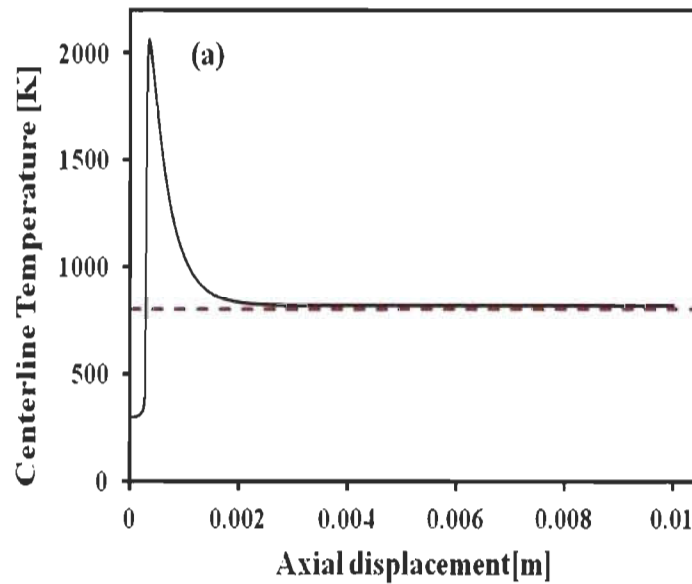


Figure 5.16 Évolution de la température le long du centre du micro réacteur à l'aide du modèle d'Arrhenius.

La température est un des paramètres les plus importants pour caractériser le processus de combustion. Dans le contexte de la micro combustion, la compréhension du profil de la température de la flamme est nécessaire pour le choix convenable du type de paroi des micros réacteurs [107]. La caractérisation de la combustion dans le cas de la micro combustion a permis de définir trois zones importantes à savoir, la zone de pré chauffage des réactifs froids entrant, la zone de combustion et la zone de post combustion [15, 58]. Dans le cas des flammes simulées dans notre étude, ces trois zones sont observées dans les cas des modèles de Mantel et de Duterque. L'effet de la cinétique chimique réduite à une équation globale sur la température conduit à une surestimation de la température de combustion, ce qui est constaté dans toute la littérature où les modèles réduits ont été utilisés.

5.3.3.4 Effets de la cinétique chimique sur la température des parois.

Dans le but de comprendre l'effet que peut avoir le mécanisme cinétique sur la température des parois, le profil de température des parois a été analysé. La **figure 5.14** présente l'évolution de la température des parois internes avec l'utilisation du modèle de Mantel. La température à l'entrée du micro réacteur est de 850 K, elle va évoluer tout le long du micro réacteur et atteindre une température maximale de 1400 K vers la sortie du micro réacteur. Il est à noter dans ce cas que la température initiale à la fois pour le milieu réactif et pour les parois a été fixée à 1200 K, pour que la flamme puisse se développer.

La **figure 5.15** décrit l'évolution de température de la paroi interne du micro réacteur pour le modèle de cinétique chimique de Duterque; la température à l'entrée du réacteur est de 1050 K et connaît une évolution importante dès l'inflammation du mélange, pour atteindre un palier continu de 1700 K dès la moitié du parcours du fluide. Dans le cas de cette simulation, la température initiale à la fois pour le milieu d'écoulement du fluide réactif que pour les parois a été fixée à 1400 K, température à partir de laquelle la flamme a pu se développer et être stabilisée.

La **figure 5.16** montre l'évolution de température de paroi dans le cadre des simulations effectuées à l'aide du modèle d'Arrhenius; la température des parois est de 800 K et demeure constante de l'entrée à la sortie du réacteur, sans aucune variation perceptible, malgré l'augmentation de température du mélange réactionnel. La température initiale à la fois du milieu réactionnel et de la paroi était fixée à 1000 K, température à partir de laquelle la flamme a pu se développer. Il est important de signaler que dans le cas de cette simulation, cette température initiale a été plusieurs fois variée pour voir l'effet sur le comportement de la flamme. Ces changements de température entraînaient un manque de

convergence voire un échec des simulations lorsque la température initiale fixée était supérieure à 1000 K, dans le cas contraire rien de significatif ne se passait.

La température des parois est un des paramètres utiles dans l'analyse du fonctionnement d'un micro réacteur, car elle joue un rôle primordial pour l'ignition des réactifs froids entrant et pour la stabilisation de la flamme. La paroi joue un double rôle complémentaire dans le transfert de chaleur à l'intérieur du micro réacteur; d'un côté elle constitue le chemin de transfert de chaleur de la zone de post combustion à celle de préchauffage des réactifs froids, ce qui permet d'éviter l'utilisation d'un système de préchauffage; de l'autre, elle contribue aux échanges de chaleur avec l'extérieur[14]. Aucune particularité n'a été observée sur le profil de température des parois qui montre l'impact de la cinétique chimique à une réaction globale; cependant on peut affirmer que la cinétique chimique fixe la température initiale à choisir lors des simulations. Dans l'étude menée par J.Li et *al.* [107] elle a été fixée à 1600 K; par contre dans celle effectuée par Norton et Vlachos [58] elle fut de 1000 K, et pour les trois modèles simulés de Mantel, Duterque, Arrhenius, elles furent de 1200 K, 1400 K et 1000 K respectivement.

5.4 Conclusion

Ce chapitre avait pour but de décrire le processus de simulation d'une flamme numérique. Il entre en droite ligne de la plus value apportée par ce travail car il répond au premier objectif qui était de produire une micro flamme numérique. Le travail effectué a permis de présenter d'autres modèles de cinétique chimique simplifiée pouvant être utilisés en micro combustion. Il ressort de cette étude que la cinétique chimique à une équation globale impacte sur la forme de la micro flamme, des flammes convexe, arrondie et allongée ont été obtenues respectivement par les modèles de Mantel et de Duterque tandis

que celle obtenue par le modèle qualifié d'Ahrrenius présentait un hot spot. La température de ces flammes est surestimée, ce qui était attendu, cependant on peut noter dans le cas du modèle de Duterque une température excessive de combustion de l'ordre de 2500 K. Aucune particularité n'a été remarquée sur le profil de température des parois.

De façon évidente, la cinétique chimique joue un rôle important sur la détermination de la température initiale à choisir pour la simulation des micros flammes. La prédiction de la flamme obtenue avec le modèle de Mantel est cohérente avec les résultats de la littérature et peut être utilisée aisément pour un calcul numérique en micro combustion.

Dans la mesure où le but de l'étude est d'évaluer la production des polluants dans un micro réacteur, il était nécessaire de générer au préalable une flamme. Aussi étant donné qu'il est possible d'utiliser des modèles de cinétique chimique réduits pour l'évaluation de ces polluants, il est nécessaire de comprendre quelles étaient leurs influences sur une micro flamme de pré mélange méthane/air.

Dans le chapitre suivant l'accent sera mis sur la formation des polluants. Leur production dans un réacteur modèle (rectangulaire) avec un pré mélange méthane/air sera étudiée.

Chapitre 6 - **Modélisation et simulation numérique de la production des polluants en micro combustion**

6.1 Introduction

Dans un micro réacteur, la chambre de combustion est l'élément essentiel d'un dispositif MNPG (Micro Nano Power Generator), à travers lequel l'énergie contenue dans le combustible est utilisée pour générer de l'énergie électrique, mécanique ou cinétique par la combustion. La combustion aussi bien dans les dispositifs macroscopiques que mésoscopiques donne lieu à des produits polluants, potentiellement nuisibles à l'environnement et aux humains. Il en est assurément de même pour les MNPG, mais avec peut être une ampleur moindre.

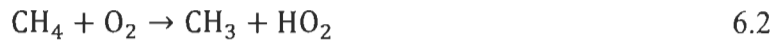
Les micros dispositifs de production d'énergie ont pour but de remplacer dans leur utilisation, les batteries et les piles dont le poids et surtout l'autonomie constituent un handicap. Ce handicap peut être comblé par les MNPGs beaucoup plus légers avec un potentiel énergétique des fois jusqu'à 20 fois supérieur. Seulement, la proximité de tels dispositifs lors de leur fonctionnement avec les utilisateurs deviendrait un inconvénient si les polluants rejetés au cours de leur utilisation étaient en qualité et en quantité nocifs.

Dans ce chapitre il est question de faire une analyse qualitative et quantitative des polluants produits par le micro réacteur modèle (micro réacteur tubulaire rectangulaire), avec une flamme de pré mélange méthane/air.

6.2 La formation des polluants dans une chambre de combustion

L'oxydation du méthane (CH_4) met en jeu un très grand nombre de réactions et d'espèces chimiques. Ces réactions se répartissent en 3 étapes:

- Initiation



- Propagation



- Terminaison



La décomposition du méthane au cours des réactions successives ayant lieu lors de la combustion est un processus à travers lequel on observe la disparition des réactifs (entrant) et la génération des produits de combustion encore appelés fumées (sortant). Le type de combustion (pauvre ou riche), la qualité de la combustion (complète ou non) et l'effet des parois conduisent à la production des espèces chimiques sous plusieurs formes. Les polluants peuvent être définis comme étant les produits de combustion dont les effets sur l'environnement ou sur les humains sont nocifs.

Le contrôle des émissions de polluants est un facteur majeur dans la conception des dispositifs de combustion modernes[117]. Les législations des pays sont de plus en plus contraignantes et les appareils de contrôle de plus en plus fiables pour détecter le type et la

quantité de polluants formés. Bien que les intervenants dans ce secteur soient tous informés et sensibilisés, il n'en demeure pas moins que la production d'énergie par la combustion s'accompagne inéluctablement de la formation des polluants. Le contrôle des émissions peut parfois impliquer un compromis d'efficacité thermique (consommation de carburant); plus la demande en énergie est importante plus la production des fumées le sera. Les polluants nocifs, générés au cours d'une réaction de combustion comprennent : les matières particulaires (suie, cendres, aérosols), les oxydes d'azote, les oxydes de soufre, le monoxyde de carbone, les hydrocarbures partiellement brûlés ou imbrûlés et le dioxyde de carbone.

6.2.1 Classement des polluants

Il existe près de deux cents substances répertoriées comme espèces nocives pour l'environnement et l'air ambiant[117], en voici quelques unes :

- Les hydrocarbures aromatiques polycycliques, les aromatiques et les aliphatiques sélectionnés.
- Les hydrocarbures halogénés sélectionnés
- Divers composés organiques oxygénés
- Les métaux et composés métalliques
- Les hydrocarbures aromatiques polycycliques avec l'atome d'azote dans leur structure

Les produits de combustion font partie des espèces précédemment listées et ont été identifiés et classés pour certains par les protocoles de Kyoto (1997), Montréal (1987),

Londres (1990) et de Copenhague (1992) parmi les gaz à effet de serre participant au réchauffement climatique, il s'agit de:

- le dioxyde de carbone, CO_2
- le méthane, CH_4
- le protoxyde d'azote, N_2O
- les matières fines en suspension ou matières particulaires (PM_{10} , $\text{PM}_{2,5}$)
- le H_2O stratosphérique
- l'ozone troposphérique et stratosphérique, O_3
- les sulfates.

De même, certaines de ces espèces ont un effet extrêmement nocif sur la santé des humains comme les matières particulaires; les particules fines pénètrent en profondeur dans les poumons; elles peuvent être à l'origine d'inflammations et de l'aggravation de l'état de santé des personnes atteintes de maladies cardiaques et pulmonaires. De plus, elles peuvent transporter des composés cancérogènes adsorbés sur leur surface jusque dans les poumons[118]. Actuellement, les particules en suspension (ou matières particulaires) et l'ozone constituent un risque sanitaire grave dans de nombreuses villes des pays développés et en développement. On peut établir une relation quantitative entre le niveau de pollution et certains critères sanitaires tels que la mortalité[119].

6.2.2 Influence de la combustion sur la formation des polluants

La combustion a une influence sur la formation aléatoire des polluants, aussi bien par le type de combustion (riche ou pauvre), que par la qualité de la combustion (complète ou incomplète); de même on peut prendre en compte l'action des parois du réacteur sur la formation des produits de combustion[120]. En macro combustion les parois n'interviennent qu'indirectement dans la génération d'une flamme auto entretenue, cependant en micro combustion les parois sont partie prenante de la production d'une flamme stable et par conséquent constituent un critère à considérer dans l'analyse de la production des polluants.

6.2.2.1 Type, qualité de la combustion et formation des polluants

Une réaction de combustion se déroule dans un intervalle appelé limite d'inflammabilité, cet intervalle permet aussi d'identifier le type de combustion, riche ou pauvre et par conséquent la cinétique chimique qui décrira le processus ou la vitesse de décomposition des réactifs.

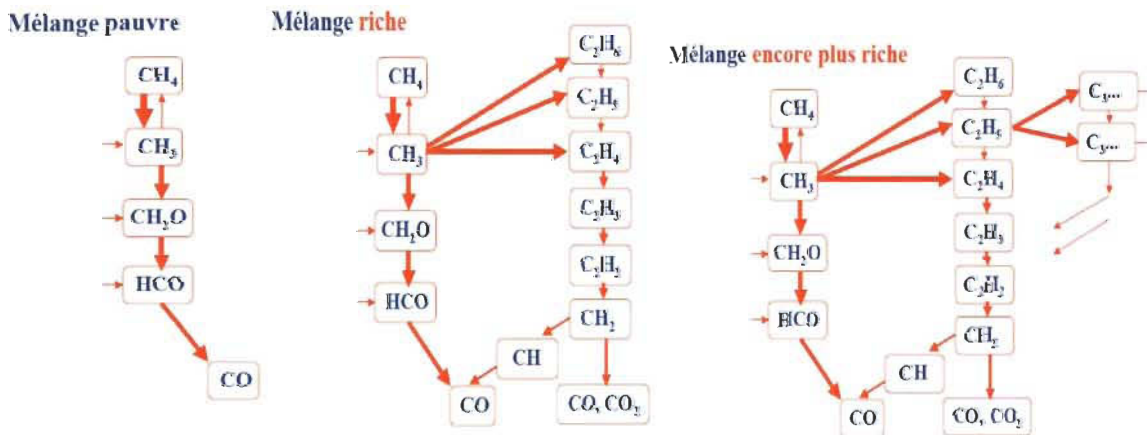


Figure 6.1 Décomposition du méthane par rapport à la richesse d'un mélange[121]

La figure ci-dessus montre le processus de combustion du méthane selon que le mélange soit riche ou pauvre.

Par rapport à chaque type de combustion, certaines espèces ont une plus forte probabilité d'apparition que d'autres, ce qui permettra dans une étude de faire des éliminations judicieuses d'espèces susceptibles de se former. La combustion dans un dispositif de production d'énergie (moteurs, turbines, chaudières, fours) se produit par rapport à un type de combustion adapté à sa technologie et selon différents types de combustibles (liquide, gazeux, solides)[122]. Par exemple, dans les moteurs, nous avons les moteurs à essence qui fonctionnent avec une combustion riche et les moteurs diesel qui fonctionnent avec une combustion pauvre; de même les moteurs à essence seront alimentés par un carburant léger (ordinaire) tandis que les moteurs diesel seront alimentés par le gasoil beaucoup plus lourd. Les polluants prédominants selon certains dispositifs sont les suivants :

- Les moteurs à essence (SI): NO_x , CO, HC imbrûlés
- Les moteurs diesels (IC): NO_x , CO, HC imbrûlés, particules
- Turbines à gaz (stationnaire, les avions): NO_x
- Les centrales électriques: NO_x , CO, particules, SO_2

En outre, lors de la combustion d'un mélange, sa qualité favorisera la présence d'un certain nombre d'espèces chimiques polluantes. Par exemple, il est largement connu, qu'une combustion incomplète engendrera des imbrûlés CO; de même, la température de fonctionnement, selon qu'elle soit très élevée ou basse, joue un rôle dans la sélection des

espèces probablement présentes dans les produits de combustion[121]. Tous ces critères entrent dans l'étude des polluants.

6.2.2.2 **Parois du réacteur et formation des polluants**

Dans un micro réacteur, les parois jouent un rôle très important dans la mesure où elles permettent à la fois de stabiliser la flamme produite dans le micro réacteur en réchauffant les réactifs froids entrant et en même temps en favorisant leur auto ignition. D'un autre côté les parois peuvent être à l'origine de l'extinction totale ou partielle de la flamme, car les échanges de chaleur entre l'extérieur et l'intérieur du micro réacteur fonction du ratio surface/volume(S/V) sont la clé pour la production d'une micro flamme.

Le rôle prépondérant que jouent les parois du micro réacteur est aussi à l'origine de la production des polluants dans les fumées générées. D.G. Vlachos et *al.* montrent que les parois influencent la production des polluants[123]; elles peuvent altérer une combustion homogène; de même, une température élevée des parois favorise la formation des oxydes d'azote (NO_x). Aussi montrent-ils que des parois froides à l'origine de l'extinction de la flamme peuvent figer les réactions chimiques vers la couche limite et par là même favoriser la formation des polluants.

6.2.3 *Caractérisation des polluants*

6.2.3.1 **La formation des NO_x**

Les oxydes d'azote ou oxydes nitriques se forment dans les gaz brûlés à haute température au cours du processus de combustion. Au cours de son expansion, comme la température des gaz brûlés baisse, le monoxyde d'azote (NO) se fige, étant donné que le

processus chimique de décomposition devient extrêmement lent. La température et la quantité d'oxygène dans les gaz brûlés sont deux des principales variables qui affectent la formation de NO[124].

Les oxydes d'azote n'entrent pas dans la formulation des équations chimiques que décrit une cinétique chimique. Leur processus se fait en marge, mais doit toujours être considéré dans la mesure où la combustion du combustible se fait avec de l'air ambiant. Les oxydes d'azote sont à l'origine des pluies acides par la formation d'acide nitrique. Dans les chambres de combustion, les oxydes d'azote se retrouvent dans les fumées exclusivement sous forme de NO. Le NO₂ par contre se forme grâce à l'oxygène ambiant à la sortie de la chambre de combustion. On distingue trois mécanismes de formation de monoxyde d'azote NO :

Le premier est le NO thermique (Mécanisme de Zeldovich 1947) résulte de l'oxydation de l'azote moléculaire dans la zone post-flamme[125, 126]. La réaction (6.5) est l'étape limitante de ce mécanisme. Cette réaction présente une énergie d'activation élevée. Elle ne sera donc rapide qu'à haute température et se déroulera dans le front de flamme, ce qui explique qu'elle est prédominante dans les chambres de combustion à haute température (>1500 K); sa formation est liée à la concentration d'oxygène et à la durée de passage de l'air dans la zone de réaction[124]. Le mécanisme de base pour la production de NO thermique est donné par six réactions chimiques suivantes :



La contribution de la réaction (6.7) est faible pour les mélanges pauvres, mais pour les mélanges riches, elle devrait être considérée. La réaction directe 6.5 contrôle le système, mais elle est lente à basse température (l'énergie d'activation est élevée). Ainsi, elle est effective dans la zone post-flamme où la température est élevée et le temps de réaction disponible.

Les concentrations de 1000 à 4000 ppm de NO sont généralement observées dans les systèmes de combustion non contrôlés[126]. Pour réduire le NO-thermique, il faut abaisser la température de la flamme, le temps de séjour, réduire la concentration en oxygène dans la région du pic de température.

À partir des réactions 6.5, 6.6, 6.7, les constantes cinétiques de formation du NO thermique peut être calculée:

$$k_{1f} = 1,8 \cdot 10^{11} \exp(-38,370/T) \quad 6.8$$

$$k_{1r} = 3,8 \cdot 10^{10} \exp(-425/T) \quad 6.9$$

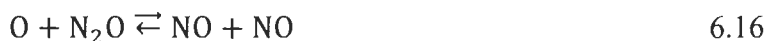
$$k_{2r} = 1,8 \cdot 10^7 \exp(-4680/T) \quad 6.10$$

$$k_{2r} = 3,8. 10^6 \exp (-20,820/T) \quad 6.11$$

$$k_{3f} = 7,1. 10^{11} \exp (-450/T) \quad 6.12$$

$$k_{3r} = 1,7. 10^{11} \exp (-24,560/T) \quad 6.13$$

Le second est le NO combustible (mécanisme de combustible), qui est dû à l'oxydation de l'azote organique contenu dans les composants du combustible et à l'oxygène si la température dépasse 1300 K[125, 126]. La liaison carbone-azote possède une énergie de liaison bien plus faible que dans N₂. Cette voie de formation sera donc plus facile et plus rapide à « basse température » que le mécanisme du NO thermique. Des réactions rapides conduisent à la formation de l'acide cyanhydrique, HCN, qui réagit avec l'oxygène atomique. Il est important dans le cas d'une combustion pauvre ($\phi < 0,8$)[124]. Le mécanisme de base pour la production de NO combustible est donné par trois réactions chimiques :

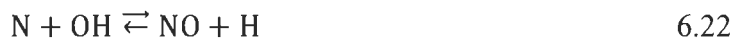


Le troisième est le NO primaire encore appelé le NO précoce ou le prompt NO (Mécanisme de Fenimore 1971), est formé par réaction de l'oxygène libre présent dans l'excès d'air. Il est produit rapidement dans la zone de flamme, bien avant qu'il y ait eu le temps de former le NO par le mécanisme thermique[125, 126]. Le schéma général est tel que les radicaux d'hydrocarbures forment d'abord les espèces CN et HCN. Contrairement au mécanisme du NO-thermique, le prompt-NO est produit en milieu riche à relativement

basse température (>1000 K)[124]. Le mécanisme de base pour la production de NO de Fenimore est donné par deux réactions chimiques :



La conversion de l'acide cyanhydrique ou cyanure d'hydrogène, HCN, pour former du NO est la suivante ;



Pour des rapports d'équivalence supérieurs à 1,2, la chimie devient plus complexe et il est couplé avec le mécanisme thermique.

Pour limiter la formation du prompt-NO, on augmentera la vitesse de mélange combustible/air. Généralement, la quantité de NO formée par ce mécanisme est faible comparée à celle issue du mécanisme de Zeldovich.

6.2.3.2 La formation des imbrûlés de combustible HC, CO

Les émissions de HC imbrûlées sont de divers composés de carbone et d'hydrogène. Ils proviennent du combustible imbrûlé ou partiellement brûlé et à un moindre degré, de l'huile souvent utilisée dans certains dispositifs de production d'énergie pour la lubrification des pièces mécaniques. Ils sont estimés à 1000-3000 ppm dans des conditions normales de

fonctionnement (avant catalyseur) qui correspond à environ 1 à 2% de la quantité de combustible s'écoulant dans le réacteur.

Le monoxyde de carbone (CO) résulte de l'oxydation incomplète du carbone du carburant. Il est présent en quantité importante dans les produits de combustion, lorsque la combustion est riche et dans des gaz brûlés à haute température. En effet il est déterminé par le ratio air-carburant; cependant en équilibre chimique lors de la combustion, la recombinaison avec l'oxygène est lente et le niveau de CO est figé pendant l'expansion et l'évacuation des fumées.

6.2.3.3 Les matières particulaires

Elles sont caractérisées par des fumées noires émises par des dispositifs ayant une mauvaise combustion; on les retrouve dans des dispositifs qui fonctionnent avec une combustion riche tels que les moteurs diesel. Elles sont constituées des particules de suie, d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) ou d'aérosols de combustibles imbrûlés.

La suie consiste en des particules carbonées produites par le processus de combustion en phase gazeuse, c'est la transition de l'état gazeux à une phase solide des fumées. Il s'agit d'un artefact de la combustion de diffusion; en combustion pré mélangée la suie ne peut se former à moins que le ratio équivalent ne soit compris entre 1,7-2,0.

Les particules de suie se forment dans les zones extrêmement riches en combustible. Les molécules de combustible pyrolysent, se décomposent et forment alors des composés aromatiques polycycliques de masse moléculaire élevée. Ces derniers forment éventuellement des noyaux de particules de suie qui se développent et s'agglomèrent. Une

fraction substantielle de la suie formée (plus de 90 à 95%) s'oxyde à l'intérieur de la chambre de combustion.

- Le coke ou les cénosphères sont des particules carbonées formées par suite de la pyrolyse directe de combustibles hydrocarbonés liquides.
- Les matières particulaires (PM) sont constituées des particules qui peuvent être collectées sur les sondes de mesure ou des instruments tels que des filtres. Elles proviennent d'une variété de sources.

6.2.3.4 Les oxydes de soufre

Ils sont essentiellement constitués de SO_2 et de SO_3 . Le soufre provient du combustible, qu'on retrouve essentiellement dans les combustibles fossiles solides et liquides, tels que le diesel, le charbon, le fuel lourd. Lors de leur combustion, le soufre est oxydé en SO_2 (95%) et en SO_3 (5%).

Les SO_2 sont des gaz incolores, irritants et très solubles dans l'eau ce qui les rend assez corrosifs, tandis que le SO_3 forme un aérosol très irritant en présence de l'eau H_2SO_4 .

Le soufre dans le processus de combustion est relativement facile à oxyder en dioxyde de soufre (SO_2) en conformité avec le schéma réactionnel simplifié suivant.



La vitesse de cette réaction, à des températures dans lesquelles le processus de combustion est exécuté, est très élevée. Environ 90 à 95% du soufre contenu dans le combustible est oxydé en SO_2 dans le processus de combustion. La présence, dans le matériau brûlé d'une fraction non combustible contenant des métaux (par exemple, le

vanadium V) se traduira par une oxydation catalytique partielle du dioxyde de soufre formé au trioxyde de soufre (SO₃) conformément à l'équation de réaction:



Il doit être clairement indiqué que dans les fumées de combustion le SO₃ peut être présent en quantité infime (bien en dessous de 1% du total des émissions de composés soufrés) et de dioxyde de soufre. Le SO₂ sera le principal polluant qui est émis. C'est ce qu'on appelle le polluant de matières premières, dont la quantité dans les gaz d'échappement dans presque 100%, correspond à la quantité de soufre introduite dans le processus de combustion. Cela permet un calcul relativement précis des émissions de soufre provenant des procédés de combustion.

6.3 La pollution en micro et nano combustion

L'étude des polluants émis par des dispositifs microscopiques de production d'énergie est peu abondante, néanmoins quelques auteurs s'y sont attardés. Dans la mesure où ces dispositifs ont une consommation de combustible moins importante que leurs homologues macroscopiques, plusieurs auteurs ont laissé penser par déduction logique que leurs polluants seraient moins abondants et par conséquent moins nocifs pour l'environnement. En 2002, Fernandez Pollo déclarait que la production de chaleur des MNPG, de CO₂ et de H₂O serait comparable pour les dispositifs mesoscopiques à ceux des humains et de fait beaucoup moins importante pour les dispositifs microscopiques[1]. Kim, Nam Il *et al.* ont expérimentalement étudié la production des polluants d'un micro réacteur swiss roll comme dispositif de chauffage[127]. Ils en sont arrivés à la conclusion que lorsqu'on réduit les dimensions de leur dispositif, la chaleur générée augmente, tandis que la production des

oxydes d'azote NO_x diminue. Cependant, celle des monoxydes de carbone CO augmente. La recherche poussée dans le domaine de la production des polluants dans les micros dispositifs est presque inexistante, ce qui peut être justifié par le fait que la mise sur pied des microréacteurs, il y a encore quelques années, était elle-même à ses balbutiements.

Aujourd'hui comme la technologie semble être maîtrisée et plusieurs prototypes sont fonctionnels, il est peut-être temps d'étudier le processus de formation des polluants dans de tels dispositifs. Bien qu'il soit pertinent de faire une étude comparative des pollutions des différentes sources d'énergie portative, il est à noter que cet exercice n'est pas judicieux car certaines sources d'énergie portatives conventionnelles telles que les piles et les batteries ne génèrent aucune pollution lors de leur utilisation comparativement aux micros et nano réacteurs. Cependant une étude comparative sur la pollution générée lors de leur recyclage peut être faite. Toutes fois, une telle analyse est hors du champ de recherche de ce travail.

6.4 Évaluation numérique des polluants dans une micro flamme de pré mélange méthane/air.

Le développement de dispositifs électroniques ces cinq dernières années s'est accompagné de la réduction des dimensions, de la diminution du poids, mais surtout de la multifonctionnalité des appareils. Toutes ces modifications nécessitent une batterie de haute densité d'énergie pour leur alimentation électrique. Malgré des progrès considérables, l'autonomie de ces batteries est limitée et constitue un handicap lié à l'utilisation continue de ces dispositifs. En plus du poids des batteries, leur volume et les effets néfastes sur l'environnement après leur utilisation, sont un ensemble d'inconvénients pour les appareils électroniques, lorsqu'un espace confiné est requis. En outre, d'autres appareils électroniques

ou mécaniques de technologie avancée dépendent des batteries qui occupent un volume important dans l'ensemble de ces dispositifs [128]. Les micros et nano systèmes de production d'énergie (MNPG) basés sur la combustion des hydrocarbures sont des solutions alternatives pour l'alimentation de certains équipements tels que les ordinateurs portables, les téléphones cellulaires, des robots, micro fusées, mini avions, drones qui seront probablement dans un futur plus ou moins proche, alimentés par des microréacteurs [128-130]. Le concept derrière cette nouvelle technologie est d'utiliser l'énergie spécifique élevée de combustibles d'hydrocarbures lors de la combustion générée dans ces microsystèmes pour produire de l'énergie [9, 131]. En outre, ils sont facilement transportables, tout à fait sûrs et peut être moins nocifs pour l'environnement [1] .

Les MNPG définis comme des nano et micro systèmes utilisés pour la production électrique et la conversion d'énergie, y compris la propulsion et le refroidissement, peuvent être catégorisés comme : 1) les micros machines thermodynamiques incluant les micros turbines (gaz et vapeur), les moteurs à combustion internes miniatures et les micros refroidisseurs; 2) les structures solides permettant la conversion directe d'énergie tels que, les microstructures thermoélectriques et photovoltaïques; et 3) les dispositifs permettant l'exploitation de l'énergie de vibration tels que les micros générateurs piézoélectriques, magnétiques ou électrostatiques et micro propulseurs pour propulsion [2]. Dans tous ces systèmes MNPG, la chambre de combustion est le composant principal par lequel une micro flamme est développée, permettant la conversion de l'énergie contenue dans le mélange réactif utilisé par différents processus thermodynamiques. Comme leurs homologues des macros systèmes (four, chaudières, turbine à gaz, à vapeur, ou moteurs),

les MNPG sont susceptibles de produire des polluants et peuvent ne pas être aussi propres qu'envisagé.

Le taux de carburant utilisé par les dispositifs MNPG est fondamentalement moins important comparativement à la quantité de carburant utilisée pour des dispositifs de plus grande puissance, étant donné la petite taille de tels dispositifs. Il est alors facile de prétendre que les émissions de polluants produites par MNPG seraient faibles et sans effets considérables sur l'environnement. Plusieurs chercheurs ont aussi conclu que la production de CO_2 , H_2O et la chaleur générées seraient comparables à ceux d'un être humain pour les dispositifs à l'échelle mésoscopique et significativement moins pour ceux à l'échelle microscopique [1]. Néanmoins, il est important de garder à l'esprit que l'objectif principal des MNPG est de remplacer les batteries dans des dispositifs portables [132] et donc impliquant un usage quotidien et une proximité avec des êtres humains [133]. De plus, puisqu'il est connu que les micros dispositifs ont une moins bonne efficacité que leur homologue de macro combustion, on pourrait par conséquent s'attendre que la production des imbrûlés soit plutôt importante [1]. On peut tout aussi relever que la combustion dans les MNPG est tout à fait particulière, particularité qui pourrait favoriser la production des polluants. En effet, l'interaction des parois sur la stabilité de la flamme favorise la production des NO_x [123], responsables de plusieurs maladies ou d'effets néfastes sur l'environnement [124, 134]. C'est pourquoi il est important d'étudier les émissions des polluants afin d'anticiper leur potentiel effet sur l'environnement et les êtres humains qui utiliseraient de tels dispositifs.

Pour la production d'énergie, on désire l'oxydation complète du combustible en CO_2 et H_2O , avec un minimum de produits secondaires; malheureusement, cela n'arrive jamais, en

raison du processus chimique de combustion qui génère inéluctablement beaucoup plus d'espèces. L'utilisation importante de combustibles fossiles a conduit globalement à une augmentation rapide des niveaux globaux de pollution atmosphérique, par les espèces telles que les oxydes d'azote (NO_x), les oxydes de soufre, les monoxydes de carbone, les hydrocarbures imbrûlés ou partiellement imbrûlés (UHC) et les matières particulaires [117, 124]. Tandis que le monoxyde de carbone CO et l'oxygène sont d'habitude les produits d'oxydation partielle, précurseurs de l'oxydation incomplète du combustible en CO₂ et H₂O, les monoxydes d'azote NO peuvent être formés dans un processus parallèle [135] et ne sont pas souvent un sous-produit intermédiaire de combustion (NO thermique) [124]. Les polluants atmosphériques ont des effets nuisibles sur l'environnement et la santé humaine. Le contrôle des émissions polluantes est devenu un facteur incontournable dans la conception des dispositifs modernes de production d'énergie tels que les MNPG; par conséquent le développement des systèmes avec un faible taux d'émissions polluantes constitue plus qu'une nécessité. Étant donné que les lois antipollution deviennent de plus en plus strictes et que l'utilisation des MNPG pourrait devenir routinière [133], une meilleure compréhension des mécanismes et des conditions qui conduisent à la formation des polluants dans des micros dispositifs s'impose.

Une recherche abondante et riche a déjà été effectuée sur la combustion homogène du CH₄ et l'émission de polluants en macro combustion [117, 136-139], sur la description de la formation de polluants dans les chambres de combustion, leurs effets sur l'environnement et sur la santé humaine sont maintenant bien compris. Cependant, dans le domaine de MNPG, l'étude de polluants reste faiblement examinée. Kim, Nam Il *et al.* [127], ont étudié expérimentalement l'émission des polluants d'une petite chambre de combustion (Swiss

roll), comme appareil de chauffage. Ils ont montré qu'à partir du moment où la chambre de combustion devient plus petite, l'efficacité thermique augmente et les émissions de NO_x diminuent, tandis que celle de CO augmente. Ils ont aussi constaté que l'émission de CO pourrait être éliminée en ajoutant un pot catalytique à la sortie d'échappement des fumées. Efinger, M. et *al.* [140], ont effectué, la caractérisation et la réduction des émissions de polluants d'une décharge et du générateur d'une micro turbine à gaz. Nascimento, M.A.R et *al.* ont proposé une évaluation expérimentale, une comparaison de la performance et des émissions d'une micro turbine à gaz de régénération utilisant du biodiesel à partir de diverses sources comme carburant. Quelques recherches expérimentales ont abordé la question des émissions de polluants, en particulier dans le cas des micros turbines[141, 142]. Cependant, l'étude des émissions polluantes dans le cadre de la micro combustion est peu disséquée. Cette partie de l'étude sur l'analyse quantitative et qualitative des produits d'une micro combustion est utile et constitue le principal objectif de notre recherche.

Cette étude a été motivée par le désir d'évaluer les émissions d'une micro flamme de méthane/air dans un modèle de micro réacteur plug flow. Les calculs numériques se font sur la base d'un ensemble couplé d'équations paraboliques qui définissent les écoulements réactifs, avec un mécanisme de cinétique chimique simplifié à quatre équations et le mécanisme de formation du NO thermique à trois équations, au lieu de la cinétique chimique détaillée, afin de réduire le coût et le temps de calcul. Les polluants majeurs ont été évalués, tel le dioxyde de carbone, le monoxyde de carbone, l'acide d'azote. En parallèle, la structure de flamme est analysée en variant le ratio équivalent ϕ de 0.7, 0.9 et 1.

6.4.1 Méthodologie

Un pré mélange méthane/air alimente un micro réacteur tubulaire modélisé en 2D, dont les dimensions sont : hauteur entrée des réactifs 600 μm , longueur du réacteur 10000 μm , tel que représenté à la **figure 5.8** (a), avec des parois en alumina d'épaisseur 200 μm . La vitesse d'entrée des réactifs est de 0,5 m/s. Tous les calculs effectués ont été faits à l'aide du logiciel COMSOL 4.2a [102] . L'origine est fixée au centre de l'entrée du micro réacteur, l'abscisse x décrit l'axe ou la direction l'écoulement en amont du fluide réactif, tandis que y représente la distance verticale des plaques parallèles. Les hypothèses sont telles que la composante de la vitesse tourbillonnante est nulle, ce qui permet uniquement une étude symétrique par rapport au centre du micro réacteur. Seule la moitié du micro réacteur sera alors considérée dans les calculs, permettant ainsi de diminuer le temps de calcul. De plus on considérera qu'on n'a pas d'effets de Dufour[103], pas de rayonnement de gaz[14, 58], pas de travail fait par des forces visqueuses et de pression, l'étude sera réalisée à l'état stationnaire.

L'étude de l'écoulement du fluide réactif se fait en deux étapes, la première à l'aide du module « Réaction Engineering » qui permet de définir la cinétique chimique choisie, l'analyse de la combustion dans un réacteur modèle; il met en place toutes les données thermodynamiques et de transport pour réaliser la combustion dans un réacteur pratique en occurrence celui de la **figure 5.8** (modèle plug flow). La deuxième étape consiste au couplage multi physique du module « Réaction Engineering » aux modules physiques, « Transport and Concentrated Species », « Heat Transfert et Laminar Flow », qui définissent respectivement le transport d'espèces, le transfert de chaleur dans le fluide et à travers les parois et l'écoulement laminaire.

Le module « Réaction Engineering » permet l'étude de la cinétique chimique dans un modèle de réacteur piston ou « plug flow », il met en place le mécanisme de cinétique chimique que nous définissons au préalable, il permet de calculer les paramètres thermodynamiques et de transport au travers des équations 6.35, 6.36, 6.37, 6.38 et 6.39, 6.40, 6.41. Dans notre étude nous avons choisi le modèle de cinétique chimique simplifiée de Jones et Lindstedt [112] à quatre équations et cinq espèces à savoir le méthane, l'oxygène, le monoxyde de carbone, le dioxyde de carbone et de l'eau.



Le terme source est donné, par les équations de taux de réactions et de vitesse de réaction, sous la forme de :

$$k^f = AT^n \exp \left(-\frac{E_a}{R_g T} \right) \quad 6.29$$

$$R_j = k^f \prod_{i=v}^Q c_i^v \quad 6.30$$

Ici R_j, R_{CH_4} représentent le taux de réaction de l'espèce j , dans notre cas le méthane ($\text{mol}/\text{m}^3/\text{s}$), k^f est la constante du taux de réaction, A est le facteur pré exponentiel E_a est l'énergie d'activation (J/mol), R_g est la constante des gaz parfaits ($8.31 \text{ J}/\text{mol}/\text{K}$), T est la température (K), C la concentration (mol/m^3), a et b représentent les ordres partiels de la réaction.

Les paramètres A , n , E_a des équations (6.35), (6.36), (6.37), (6.38) sont donnés par [143], leurs valeurs sont définies tel que suit :

$$A_1 = 7.82 \cdot 10^{13}, n = 0, T_a(K) = 30000 \quad 6.31$$

$$A_2 = 0.30 \cdot 10^{12}, n = 0, T_a(K) = 30000 \quad 6.32$$

$$A_3 = 4.45 \cdot 10^{18}, n = -1, T_a(K) = 40000 \quad 6.33$$

$$A_4 = 2.75 \cdot 10^{12}, n = 0, T_a(K) = 20000 \quad 6.34$$

On obtient ainsi les taux de réaction suivants :

$$R_1 = 7.82 \cdot 10^{13} \exp\left(-\frac{30 \cdot 10^3}{R_g T}\right) \cdot [CH_4]^{0.5} \cdot [O_2]^{1.25} \quad 6.35$$

$$R_2 = 0.30 \cdot 10^{12} \exp\left(-\frac{30 \cdot 10^3}{R_g T}\right) \cdot [CH_4] \cdot [H_2O] \quad 6.36$$

$$R_3 = 4.45 \cdot 10^{18} T^{-1} \exp\left(-\frac{40 \cdot 10^3}{R_g T}\right) \cdot [H_2]^{0.25} \cdot [O_2]^{1.5} \quad 6.37$$

$$R_4 = 2.75 \cdot 10^{12} \exp\left(-\frac{30 \cdot 10^3}{R_g T}\right) \cdot [CO] \cdot [H_2O] \quad 6.38$$

6.4.1.1 Mécanisme de formation des NO_x

En raison de leur pertinence pratique immense, les NO_x ont été largement examinés [2, 3] à partir des dispositifs de combustion et de diverses flammes. Beaucoup de chercheurs en macro combustion se sont concentrés sur le développement de mécanismes de NO_x appropriés pour la prédiction et l'analyse détaillée des émissions des NO_x des flammes. Trois mécanismes sont généralement décrits dans la littérature, à savoir les mécanismes de NO thermique, NO du combustible et le prompt NO [4, 5]. Le schéma de réaction adoptée

pour décrire la contribution de NO_x dans les réactions de combustion a été choisi dans le mécanisme de GRI 3.0 (Gas Research Institute) [6] parmi 40 réactions de monoxyde d'Azote NO. La description de la formation de NO se fait à partir, des mécanismes de prompt NO et de NO thermique. Le mécanisme du prompt NO inclut celui de N_2O , en plus du mécanisme de Fenimore. Les réactions menant à la formation de NO_2 sont aussi incluses [7].

- a) NO thermique ou mécanisme de Zeldovich est obtenu par les trois mécanismes suivants :



Le NO thermique est le résultat de l'oxydation de la molécule d'azote dans la région de post flamme. La réaction 6.40 est l'étape limitante de ce mécanisme et a une énergie d'activation très élevée. Elle sera très rapide à des températures élevées et prendra place dans le front de flamme, ce qui explique pourquoi le NO thermique est prédominant dans la chambre de combustion à haute température ($>1500\text{ K}$). Sa formation est reliée à la concentration d'oxygène et à la durée de l'écoulement de l'air dans la zone de réaction.

- b) Le mécanisme de combustible (N_2O) est la somme de production à travers les trois équations suivantes dans le mécanisme complet.





Le mécanisme de combustible NO est dû à l'oxydation de l'azote organique, dans la composition des composants du combustible et de l'oxygène à des températures élevées, supérieures à 1300 K [126]. Le lien du carbone et de l'azote a une énergie de liaison moins forte que celle de N_2 . Ce type de formation sera plus facile et plus rapide à de basses températures que le mécanisme du NO thermique.

- c) Le mécanisme du combustible (N_2O) est la somme de production à travers les cinq équations suivantes dans le mécanisme complet.



- d) Le mécanisme du prompt NO ou de Fenimore est celui obtenu par le mécanisme complet de formation des NO moins les trois mécanismes précédents.





Le prompt NO est formé par la réaction de l'oxygène libre en excès. Il est produit rapidement dans la zone de flamme, longtemps avant que le mécanisme thermique du NO ne soit formé [144]. Le plan général est tel que les espèces HCN et CN sont d'abord formées par les radicaux d'hydrocarbure. Contrairement au mécanisme du NO thermique, le prompt NO, se forme dans un milieu riche et aux températures relativement basses ($T > 1000 \text{ K}$) [144].

En utilisant ces classifications, l'implication de chaque mécanisme peut être évaluée dans le calcul numérique. Ceci est un avantage de l'étude numérique sur celle expérimentale, parce que le résultat expérimental montre uniquement les émissions globales des NO sans toutefois les différencier [145]. Cependant, dans le cadre de cette étude, seulement le mécanisme du NO thermique est évalué. L'étude se concentrera sur l'émission de NO thermique parce que le mécanisme du combustible n'a pas une probabilité élevée de se former, surtout lorsque la température est élevée, ce qui est pourtant le cas avec la micro flamme pré mélangée méthane/air étudiée. D'autre part, le prompt NO est favorisé dans les conditions de combustion riche, tandis que dans le cas de MNPG la combustion stable est généralement obtenue dans les conditions de combustion pauvre. De plus, C.E. Lee. *et al.* ont montré que le mécanisme du NO thermique était prépondérant dans le cas de faibles gradients de vitesses, alors que celui du prompt NO était dominant dans le cas de gradients de vitesses élevées [4]; aussi N.S. Kaisare and D.G. Vlachos ont démontré que la plage de vitesse permettant la production d'une micro flamme était de l'ordre de 0.35-0.8 m/s [22] .

6.4.1.2 Modèle numérique

Le modèle géométrique du réacteur étant le même (idem pour la composition du fluide réactif), les équations numériques permettant la simulation des polluants sont les mêmes que celles du chapitre 5 et sont décrites aux pages 120 et 121. Aussi, toutes les conditions limites et le processus permettant l'analyse des polluants formés sont identiques.

6.4.2 Résultats et discussion

6.4.2.1 Structure de la micro flamme

L'étude de la production des polluants d'une flamme de combustion nécessite au préalable d'avoir une flamme à travers laquelle l'analyse va se faire. Une micro flamme de pré mélange méthane/air a été simulée à l'aide d'une cinétique chimique simplifiée à quatre équations globales. Ces simulations ont été effectuées dans les cas d'une combustion stœchiométrique ($\phi=1$) et dans les cas d'un mélange pauvre avec $\phi=0.9$ et $\phi=0.7$. À ces équations, le mécanisme de formation du NO thermique constitué de trois équations a été associé. La **figure 6.2** présente le résultat des simulations des différentes flammes obtenues dans ces conditions. On observe que les flammes simulées sont stables dans les cas **(a)**, **(b)**, **(c)**. Elles ont toutes la même forme: une flamme de forme convexe. Elles décrivent, trois zones distinctes; la zone de préchauffage qui est établie sur une infime distance. La zone de réaction constituée de deux sous zones, celles d'ignition et d'inflammation telles que décrites par Leach. T. T. *et al.* [15], dont la distance varie selon certains paramètres, température d'ignition, température d'ignition, température de combustion, taux de réaction et qui permet la recirculation de chaleur nécessaire pour le préchauffage des réactifs froids.

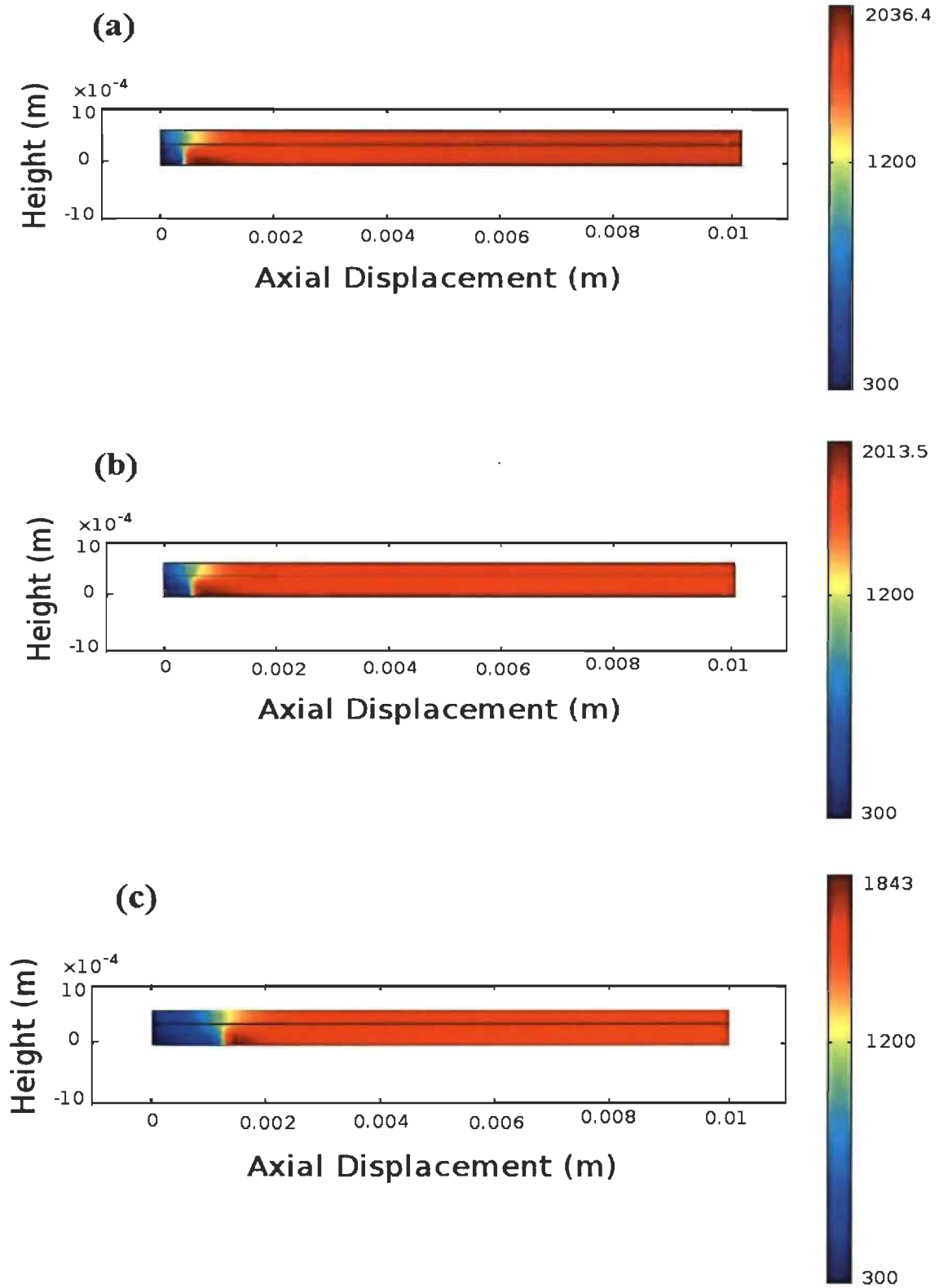


Figure 6.2 Résultat de simulation donnant la propagation de chaleur dans le micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$.

Enfin la dernière zone qui est le reste du micro réacteur et qui permet l'évacuation des produits de combustion. Dans les trois cas, la température après la zone de réaction présente une uniformité jusqu'à la sortie du micro réacteur. Cependant, il est à noter que l'analyse de la structure de ces flammes montre que la richesse du mélange influence la position de la micro flamme. Dans les conditions stœchiométriques, le fluide qui entre à la température ambiante est préchauffé par l'action des parois à travers la recirculation de la chaleur. Après ignition du fluide réactif, le pré mélange est enflammé et la flamme se forme presque à l'entrée du micro réacteur. Dans les conditions pauvres, la flamme est déviée vers le milieu du micro réacteur. Avec une richesse égale à 0.9, la flamme se forme aussi proche de l'entrée du micro réacteur, par contre lorsque la richesse du mélange est de 0.7 la flamme se déplace un peu plus loin, créant une accumulation du fluide froid à l'entrée du micro réacteur. La variation de la position de la flamme a toujours été justifiée dans plusieurs travaux par l'effet de la vitesse d'entrée des réactifs. Il est établi dans ces cas, que lorsque la vitesse d'entrée des réactifs est plus grande que la vitesse de combustion, la flamme est soufflée et se forme beaucoup plus loin de l'entrée du micro réacteur. Par contre, si la vitesse d'entrée des réactifs est inférieure à celle de combustion, la flamme se forme très proche de l'entrée du micro réacteur.

La **figure 6.3 (a)** montre l'évolution de la température au centre du micro réacteur dans les trois conditions citées plus haut ($0.7 \leq \phi \leq 1$). Dans le cas du mélange stœchiométrique, le fluide entre à la température de 300 K, passe par la température d'inflammation à $x = 0.0005 \text{ m}$, et à $x = 0.00085 \text{ m}$, atteint la température de combustion de 2036 K. Cette température est équivalente à la température adiabatique. La température commence à chuter à $x = 0.00125 \text{ m}$ pour devenir constante à $x = 0.002 \text{ m}$, se maintenant tout au long

du reste du micro réacteur à 1800 K. De même, dans les conditions d'un mélange pauvre, l'évolution du profil de température montre que pour le cas de $\phi = 0.9$, la température de combustion est presque équivalente à celle du mélange stœchiométrique et égale à 2013 K. Cependant, dans le cas de $\phi = 0.7$, la température d'ignition de 1200 K est atteinte à $x = 0.0015 \text{ m}$ et la température de combustion qui est de 1843 K est atteinte à $x = 0.00175 \text{ m}$. Elle baisse jusqu'à 1550 K à $x = 0.0025 \text{ m}$ et demeure constante le long du reste du micro réacteur. Tel que rapporté dans la littérature, l'ordre de grandeur des températures obtenues est semblable à celui obtenu avec des micros flammes simulées à l'aide d'une cinétique chimique détaillée [50].

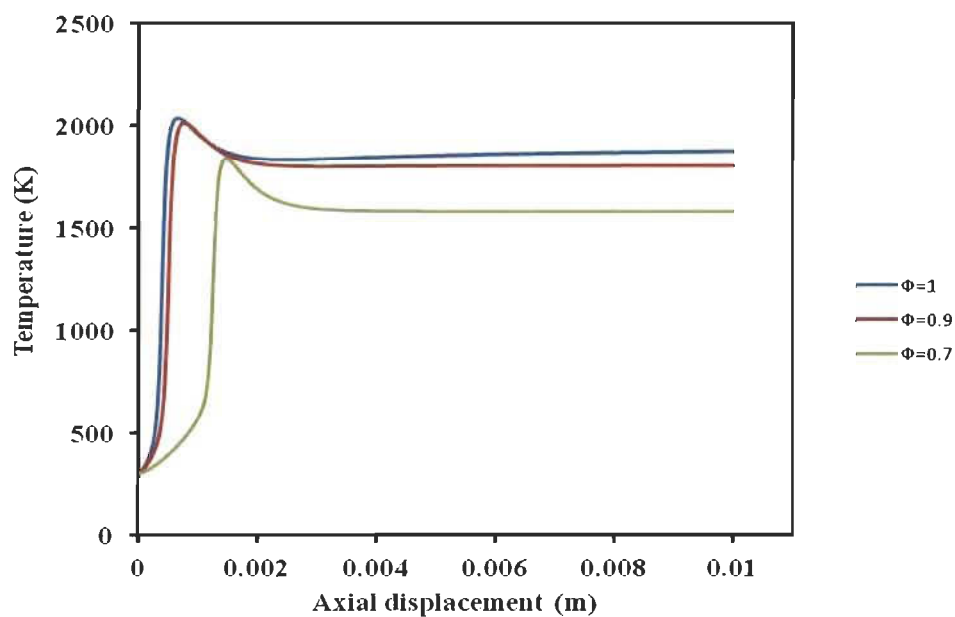


Figure 6.3 : (a) Profil axial de température le long du micro réacteur.

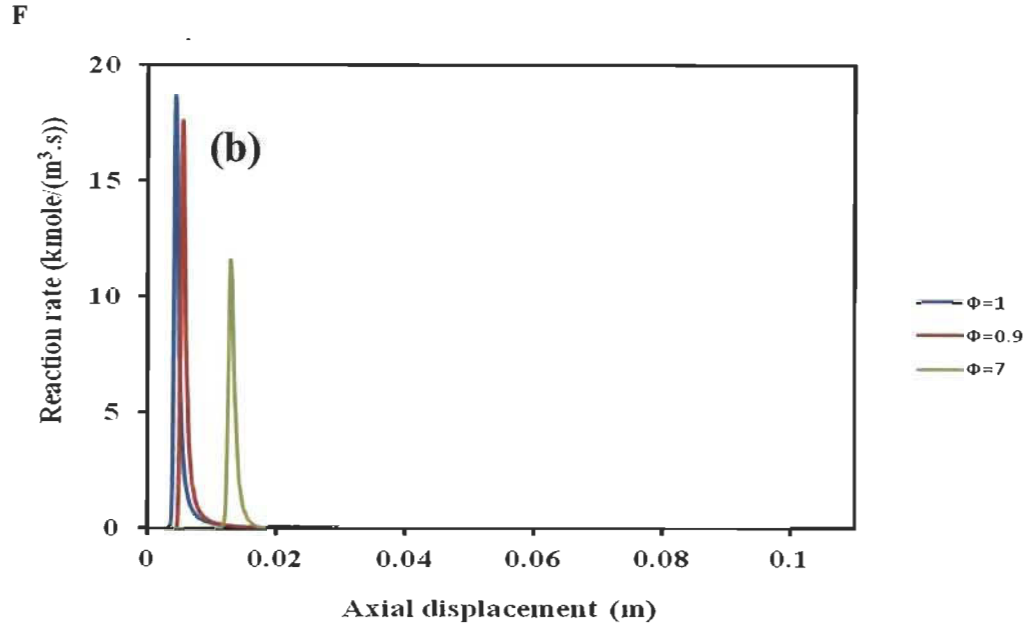


Figure 6.3 : (b) Taux de réaction du méthane le long de l'axe du micro réacteur.

Ce constat infirme la réalité selon laquelle l'utilisation de la cinétique chimique réduite occasionne l'obtention des températures excessives supérieures aux températures adiabatiques comme démontré par D.G. Vlachos [58] et plusieurs autres auteurs[146]. Aussi est-il possible dans ces trois cas de déterminer l'épaisseur des flammes simulées par la formule proposée par Sung et Law [147] :

$$\delta_r = \frac{T_f - T_0}{\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)_{max}} \quad 6.55$$

Dans le cas d'un mélange stœchiométrique nous avons, $\delta_r = 3,6 \text{ mm}$, dans les deux autres conditions, $\delta_r = 3,67 \text{ mm}$ et $\delta_r = 3.9 \text{ mm}$ respectivement pour $\phi = 0.9$ et $\phi = 0.7$. Ces valeurs de l'épaisseur de la flamme sont de sept à neuf fois supérieures à celles de l'épaisseur d'une flamme du méthane en jet libre estimée à 0.42 mm [15]. Ces épaisseurs montrent l'effet des parois sur la micro combustion.

La **figure 6.3 (b)** présente l'évolution du taux de réaction. On peut se rendre compte que la quantité de combustible qui réagit dans le cas d'un mélange stœchiométrique est de $18 \text{ kmole}/(\text{m}^3.\text{s})$ et de $17 \text{ kmole}/(\text{m}^3.\text{s})$ dans le cas d'un mélange pauvre lorsque $\phi = 0.9$. On peut donc comprendre que les températures obtenues dans ces deux cas sont élevées et penser que tout le combustible a réagi. Dans le cas du mélange avec une fraction massique de $\phi = 0.7$, le niveau du taux de réaction est beaucoup plus faible et égal à $12 \text{ kmole}/(\text{m}^3.\text{s})$, ce qui peut laisser penser que tout le combustible n'a pas brûlé. Cela s'explique par le fait qu'une quantité plus importante de réactif froid pénètre dans la zone de réaction sans toutefois bénéficier de l'effet de pré chauffage, causé par la chaleur recirculée au travers de l'entrée des parois.

Les résultats obtenus montrent clairement que la cinétique chimique réduite de Jones et Lindstedt à quatre équations peut être utilisée dans le cas de la simulation de la combustion dans les MPG et permet de décrire les processus intérieurs comme peut le faire une cinétique chimique détaillée. On aboutit à la même conclusion que Ennetta *et al.* qui montrent que cette cinétique chimique décrit bien les flammes avec des résultats proches de ceux obtenus avec une cinétique chimique détaillée [148].

6.4.2.1 Analyse de la production des polluants

Les **figures 6.4 (a), (b) et (c)** présentent les profils de la production et de la disparition des espèces majoritaires au cours de la combustion dans le micro réacteur dans les conditions stœchiométrique et pauvre. La **figure 6.4 (a)** permet de voir que le profil de la fraction massique de l'oxygène baisse considérablement après la zone de réaction et va presque disparaître à la sortie du réacteur, tandis que le méthane disparaît très vite après la

combustion. La fraction massique de la production de l'eau et du dioxyde de carbone (CO_2 et H_2O) est importante. La courbe décrivant le monoxyde de carbone (CO) est telle qu'il se forme dans la zone de réaction mais va disparaître juste après, pour ne plus apparaître dans les fumées.

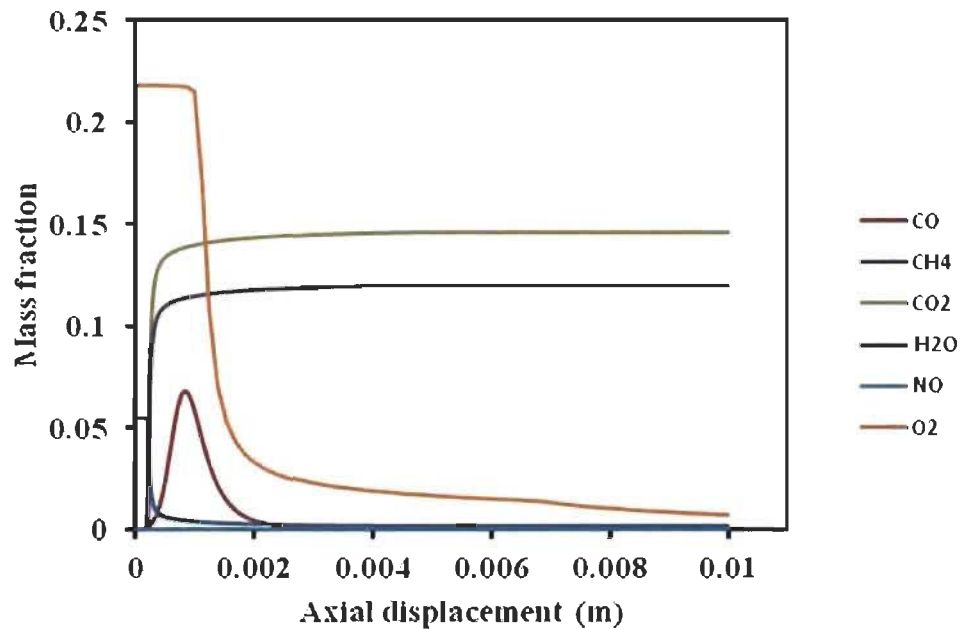


Figure 6.4 (a) : Disparition et production d'espèces le long de l'axe du micro réacteur $\phi=1$

Sur la **figure 6.4 (b)**, il est possible d'établir le même constat que précédemment. Le ratio équivalent du mélange étant alors de 0.9, on note néanmoins la présence de l'excès de l'oxygène à la sortie du micro réacteur et une légère baisse de la production de l'eau et du dioxyde de carbone.

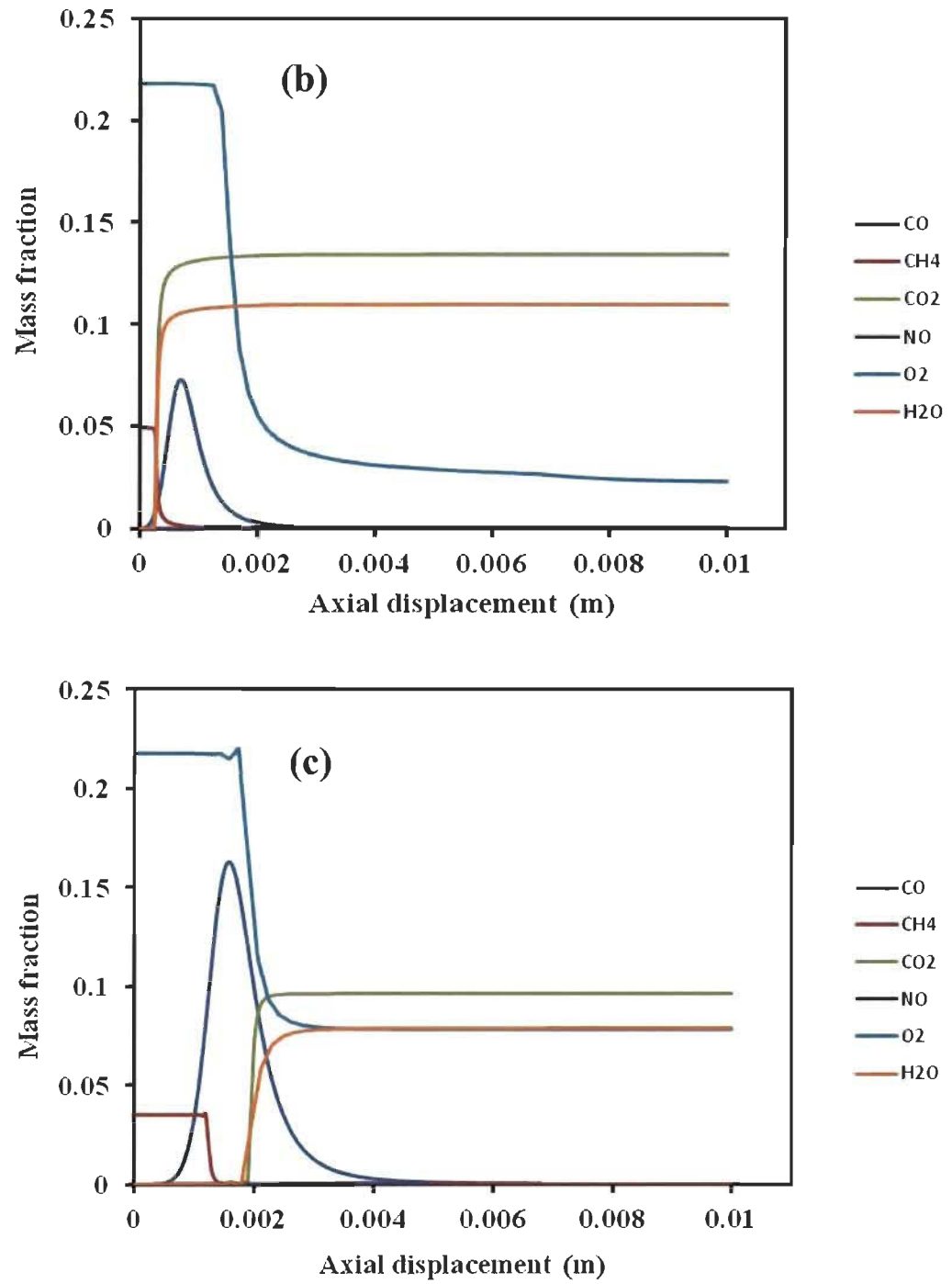


Figure 6.4 : Profil de production et de disparition des espèces majeurs le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

La **figure 6.4 (c)**, présente la formation des produits de combustion et la disparition des réactifs dans un mélange pauvre avec un ratio équivalent de 0.7. L'accumulation du fluide à l'entrée du micro réacteur, tel qu'expliqué plus haut, permet de comprendre que, même si tout le combustible brûle, il y a une forte production de monoxyde de carbone comparativement aux deux premières conditions. De plus, l'excès d'oxygène à la sortie du micro réacteur est bien plus important et du même ordre que celui de l'eau, $w_{O_2} = w_{H_2O} = 0.08$. La production du dioxyde de carbone est moins importante que celle dans les deux autres conditions. Tout comme dans un mélange, qu'il soit pauvre ou stœchiométrique, la production du NO thermique est largement faible comparativement à celle de toutes les autres espèces. On fera une analyse particulière du CO₂, du CO et du NO dans les prochains paragraphes. Ils représentent les polluants potentiellement nocifs tant pour l'environnement que pour la santé.

6.4.2.1.1 Émission du dioxyde de carbone

Le CO₂ est un gaz inévitablement présent dans les produits de combustion. Même s'il constitue un gaz à effet de serre, le CO₂ est produit autant par les humains que par des procédés. Un être humain rejette en moyenne une quantité de CO₂ estimée à 0.02 pcm. Dans un environnement de travail ou d'habitation, un air ayant une quantité de CO₂ de 450 ppm est considéré comme respirable et sans danger[117]. Plusieurs chercheurs ont par le passé affirmé que les MPGs, au vu de leur consommation de combustible, auraient une production de dioxyde de carbone faible, de l'ordre de grandeur de celle produite par des personnes. Ce travail montre que le CO₂ est bel et bien produit, mais en quantité inférieure au seuil exigé pour que l'air soit respirable. La **figure 6.5** montre l'évolution de la production du dioxyde de carbone en fonction du ratio équivalent; on observe que la

production de CO_2 baisse avec la richesse du mélange. Ceci s'explique par le fait que le dioxyde de carbone est un bon indicatif de combustion; plus le combustible est brûlé, plus il y a une production de CO_2 . La lecture de la **figure 6.5** montre que la concentration maximale de CO_2 est respectivement de 253 ppm, 248 ppm et de 200 ppm pour $\phi=1$, $\phi=0.9$ et $\phi=0.7$. Il est donc possible de déduire que la production de CO_2 dans le cas des MPG est acceptable pour la respiration et ne saurait constituer un danger, tout au moins dans le cas du modèle de réacteur étudié.

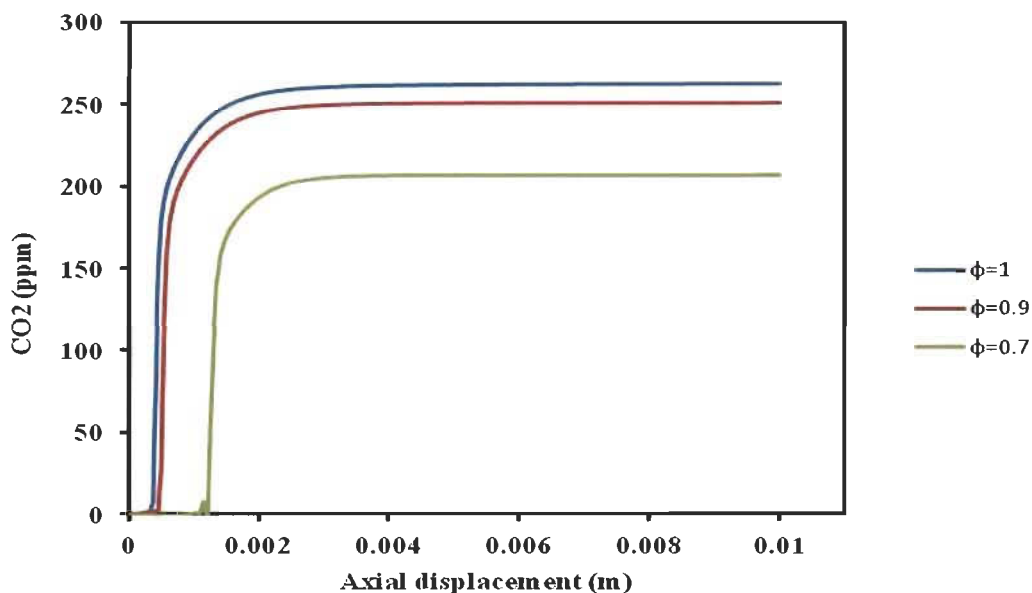


Figure 6.5 : Profil de production du dioxyde de carbone (CO_2) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

6.4.2.1.2 Émission du monoxyde de carbone

Le monoxyde de carbone est un gaz dangereux pour la santé, car il attaque les voies respiratoires et peut, même à faible dose, être mortel. Il faudrait une concentration inférieure à 1ppm de CO dans l'air pour une respiration sécuritaire [120]. Il est donc important dans la conception d'un dispositif de combustion de s'intéresser à son éventuelle

présence dans les produits de combustion rejetés par un tel système. La **figure 6.6** montre le profil du monoxyde de carbone (CO) produit dans un micro réacteur de modèle plug flow de configuration rectangulaire. Sa présence ici est due à la dissociation des espèces chimiques. Une fois les réactifs entrés dans le réacteur, la température du mélange augmente et les espèces commencent leur transformation. Le monoxyde de carbone apparaît et augmente au fur et à mesure, dans le même sens que la température des réactifs. Il atteint son maximum lorsque la température de combustion est atteinte. D.G. Vlachos *et al.* relèvent que dans le cas d'une combustion où les parois jouent un rôle prépondérant, le mélange réactif est converti substantiellement en CO_2 proche des parois après l'ignition des réactifs, et que même à haute température seul 75% de CO est converti[120]. Dans le cas de la combustion stœchiométrique, la concentration de CO atteinte est d'environ 63 ppm; elle augmente légèrement aux alentours de 68 ppm lorsque le ratio équivalent du mélange réactif est de 0.9. Cette concentration connaît une évolution très importante lorsque le ratio équivalent est de 0.7 pour atteindre un pic de 148 ppm.

Cette évolution significative de la concentration du CO dans le processus de combustion s'explique par la quantité importante de fluide froid qui se retrouve dans la zone de réaction, au moment où la température des réactifs commence son évolution. Dans les trois cas de figure, le CO disparaît en totalité lorsque la température de combustion baisse pour se stabiliser à la température des gaz de rejet. Ces températures dans l'ordre respectivement de 1800 K, 1750 K et 1550 K sont encore suffisamment importantes pour brûler le carbone et assurer une absence du CO dans les produits de combustion rejetés par le micro réacteur modèle.

Il est à mentionner que l'une des caractéristiques des MPG est d'avoir des températures des fumées élevées. En plus, les conditions de fonctionnement des MPG sont généralement en mélange pauvre; ces caractéristiques constituent une barrière à la présence même en trace de monoxyde carbone dans les produits de combustion.

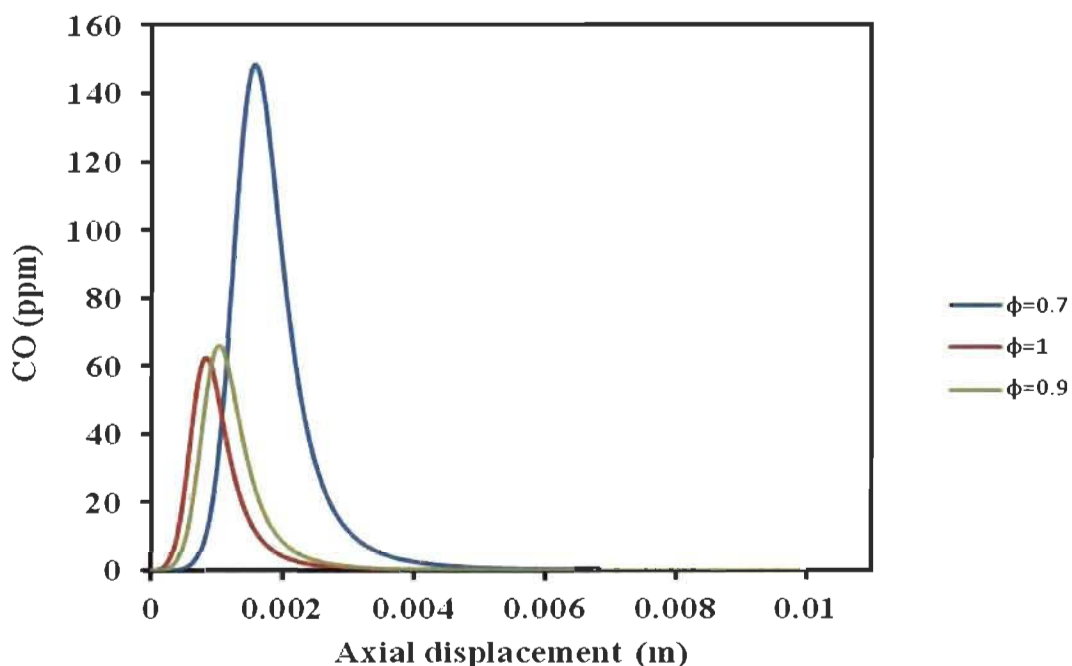


Figure 6.6 : Profil de production du monoxyde de carbone (CO) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

6.4.2.1.3 Émission du monoxyde d'Azote

La présence du monoxyde d'azote est évaluée suivant deux paramètres, la concentration et l'indice d'émission(EI) du NO thermique. La **figure 6.7(a)** présente le profil de production du NO le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent. On constate qu'il est relativement élevé 1.18 ppm pour $\phi=0.7$.

Le NO, dans les trois conditions de richesse étudiées, varie suivant la température des produits réactifs dans le milieu d'écoulement. Il atteint son point maximal lorsque le mélange se consume, l'ordre de grandeur est alors respectivement de 0,36, 0,44 et 1,18 ppm selon que $\phi=1$, $\phi=0.9$ et $\phi=0.7$. Une fois que la température baisse, le NO thermique baisse de façon drastique au deux tiers de sa production. Dans les cas d'un ratio équivalent de 1 et de 0.9, la concentration du NO thermique remonte légèrement une fois que la température des produits de combustion s'est stabilisée. Dans ces cas, la concentration du monoxyde d'azote dans les fumées est de l'ordre de 0,18 et de 0,2 ppm.

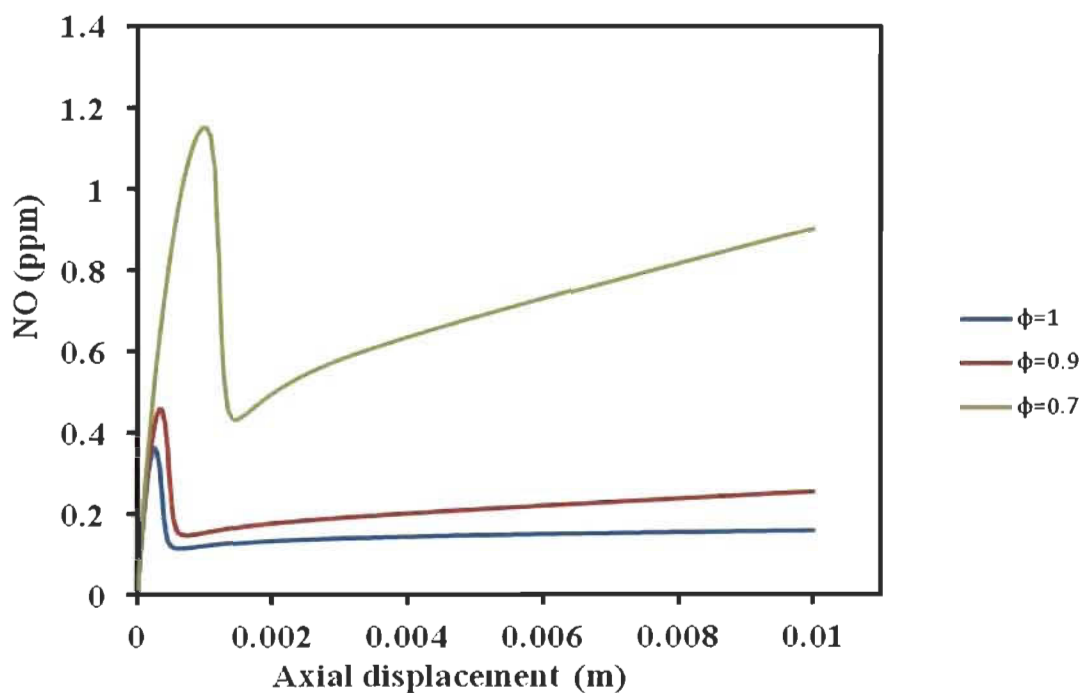


Figure 6.7 : (a) Profil de production du monoxyde d'azote (NO) le long de l'axe du micro réacteur par rapport au ratio équivalent.

Cependant dans le cas du mélange pauvre où $\phi=0.7$, la remontée de la concentration du NO est inquiétante. Dans ce cas, elle atteint la valeur de 0,8 ppm malgré la baisse de la température des fumées.

Il est possible aussi d'analyser la production du NO thermique par son index d'émission de NO (EINO) tel que formulé par Takeno et Nishioka [149], nous avons donc :

$$EINO = \frac{\int_{-L}^L \dot{\omega}_{NO} W_{NO} dx}{-\int_{-L}^L \dot{\omega}_{CH_4} W_{CH_4} dx} \quad 6.56$$

$\dot{\omega}_{NO}$, est le taux de production de NO et $\dot{\omega}_{CH_4}$ le taux de consommation du méthane.

W_{NO} et W_{CH_4} représentent respectivement la masse molaire de NO et du CH₄.

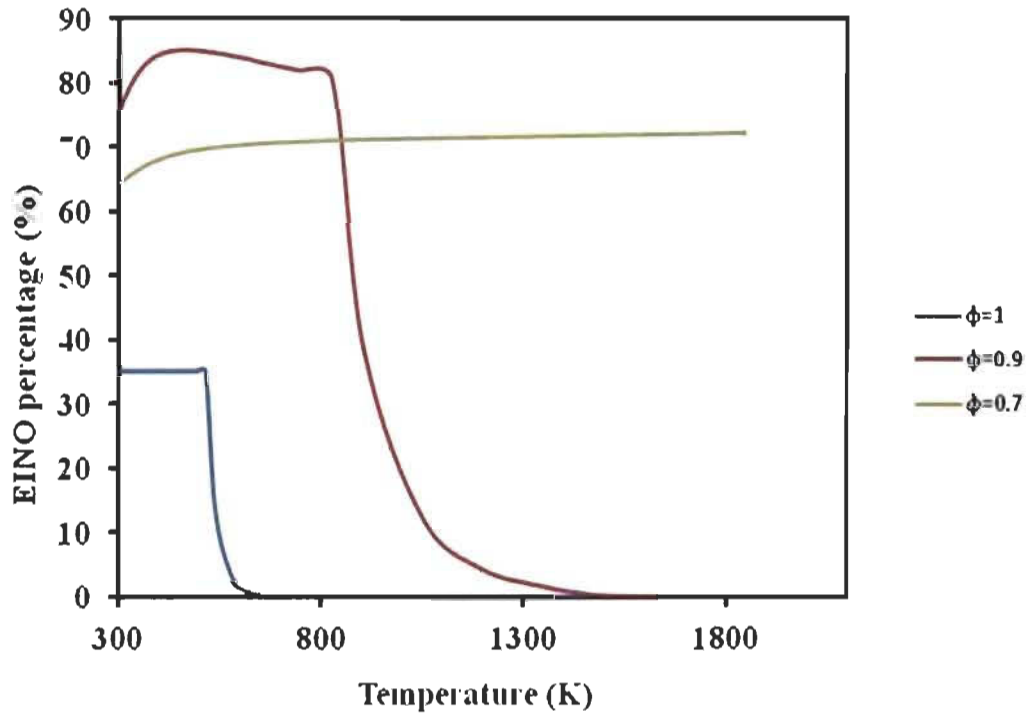


Figure 6.7 : (b) Index d'émission du monoxyde d'azote en fonction de la température axiale du micro réacteur

Dans le cas de la **figure 7 (b)**, le EINO est fonction de la température dans le micro réacteur, on observe qu'à basse température, la production du NO est importante dans les trois cas étudiés ($\phi=1$, $\phi=0.9$, $\phi=0.7$), elle est respectivement de 35%, 65% et 75% et baisse lorsque la température s'élève, sauf dans le cas où le ratio équivalent est de 0.7. La réaction de l'oxygène en excès dans le mélange avec l'azote explique ce comportement qui est révélateur d'une alerte de présence de NO dans les produits de combustion dans le cas d'un mélange très pauvre.

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, il était question de modéliser la formation des polluants dans les micros réacteurs. Nous avons au préalable étudié la formation des polluants de façon générale dans les chambres de combustion, ensuite un lien a été fait avec la combustion dans les micros dispositifs. Ce lien nous a permis de déduire que la probabilité de génération de polluants dans ce type d'appareillage n'est pas négligeable et nécessitait de s'y attarder malgré de faibles consommations de combustible. Une étude de production de polluant par un MPG de type plug flow a été faite à partir d'une flamme pré mélangée de méthane/air. On a montré que les espèces majeures à savoir le dioxyde de carbone, le monoxyde de carbone et le monoxyde d'azote ne sont pas présentes en quantité inquiétante. Une production de 250 ppm de CO_2 a été calculée dans le cas d'une combustion stœchiométrique, beaucoup moins s'agissant d'un mélange pauvre; quant au monoxyde de carbone sa présence dans les fumées est improbable au vu des températures qui règnent dans le canal de sortie des MPG. En ce qui concerne le monoxyde d'azote une combustion avec un $\phi < 0.7$ est à surveiller. C'est l'une des premières études sur les polluants en micro combustion dont la portée est pratique sur l'utilisation des MPGs.

Chapitre 7 - **Optimisation des dimensions d'un micro réacteur : de la micro combustion vers la nano combustion.**

7.1 Introduction

La réduction des dimensions des micros réacteurs est une exigence de performance pour le concept même de l'exploitation, de la conversion et de la production d'énergie dans un espace de confinement. Cette exigence qui permet de classer ce type de dispositif parmi les micros et nano générateurs d'énergie (MNPG). On rappelle que les dispositifs dont les dimensions sont supérieures à 1cm sont classés parmi les macros réacteurs, lorsqu'ils sont de l'ordre de 1mm-1cm, ce sont des méso réacteurs, entre 1mm-0,1mm ce sont des micros réacteurs et lorsque la distance d'entrée de réactifs est inférieure ou égale à 0,1mm on les qualifie de nano réacteurs [1].

Dans l'optique de produire une source d'énergie portable à haute performance à partir de la combustion, les micros réacteurs doivent présenter une géométrie capable de s'insérer dans des dispositifs électromécaniques dont les dimensions elles-mêmes sont en perpétuelle réduction. Cette réduction de dimensions a permis la construction des micros réacteurs dont les dimensions depuis une dizaine d'années sont passées de 900 μ m à 150 μ m.

Cependant, il est à noter que cette réduction de la zone de réaction, s'accompagne des problèmes de production même de la flamme, de la conception géométrique du réacteur, de la construction des matériaux permettant la mise en place de tels dispositifs. Un problème beaucoup plus important est la remise en cause de la validité des équations de Navier

Stokes permettant l'analyse numérique de l'écoulement réactif dans un dispositif aux dimensions extrêmement petites.

Ce chapitre a pour but d'optimiser les dimensions d'un micro réacteur rectangulaire, permettant la combustion d'un pré mélange méthane/air. Il élucidera les contraintes de la faisabilité de la nano combustion.

7.2 Réduction de dimension d'entrée des réactifs; effets sur la micro flamme

La réduction des dimensions des dispositifs de micro production d'énergie a fait l'objet de plusieurs recherches, qui ont permis la fabrication des MPGs (Micro Power Generation) avec des dimensions d'entrée des réactifs de l'ordre de $150\mu\text{m}$ [7] pour le plus petit prototype à nos jours. Toutefois, il est à rappeler que pour les flammes de diffusion, les dimensions des MPGs sont restées presque fixes à $750\mu\text{m}$ [13], ce qui s'explique par la difficulté de produire, dans un tel espace de confinement, un mélange homogène permettant la production d'une flamme stable, surtout dans les conditions d'un écoulement essentiellement laminaire.

Pour que ces dispositifs deviennent fiables et commercialement viables pour les exigences de production d'énergie électrique, mécanique ou de propulsion, certaines conditions opératives sont requises. Par conséquent comprendre les caractéristiques et les limites de stabilité de combustion dans des ultra micros systèmes voir des nano systèmes est essentiel dans le design des MNPG efficaces et robustes [22]. Il est largement connu aujourd'hui que les dimensions critiques pour la génération d'une flamme auto entretenue sont inférieures à celles déterminées par Davy en 1817 et qui était de 1 mm. Cette avancée est largement due à plusieurs travaux expérimentaux et numériques qui ont permis de

comprendre les processus mis en jeu et de découvrir les problèmes majeurs qui empêchaient la réussite des essais préalablement effectués.

Trois problèmes majeurs à savoir mécaniques, thermiques et chimiques ont longtemps été des barrières à la mise sur pied des prototypes permettant de justifier la possibilité de la micro combustion. Ces problèmes complexes liés à l'écoulement des fluides réactifs sont fonction de la structure et des dimensions de ces dispositifs (qualité des matériaux utilisés, dimensionnement). Ils sont attribuables à quatre mécanismes : Le premier est l'interaction thermique entre la flamme et la paroi. Le deuxième est l'interaction chimique entre les espèces dans une flamme. Le troisième est l'interaction dynamique entre un champ d'écoulement et une flamme. Ce dernier point est l'effet de l'écoulement de convection sur une flamme. Il a été considéré comme une question importante et mis en exergue par les travaux de Karlovitz *et al.* [117].

Les problèmes mécaniques que posait le prototypage d'un micro réacteur étaient dus aux très grands gradients de température qui régnaient dans la micro chambre de combustion et qui détérioraient la paroi. Les solutions proposées visaient à choisir des épaisseurs des parois plus ou moins importantes afin de préserver le plus d'énergie ou d'éviter la formation des hot spots, en favorisant les échanges de chaleur avec l'extérieur. Dans les deux cas de figure, l'efficacité du micro réacteur n'était pas renforcée. La découverte de nouveaux matériaux tels que l'alumine, le quartz et certaines céramiques ont permis de construire les chambres de combustion plus robustes. On ne s'attardera pas sur ce point, car les solutions sont aujourd'hui utilisées avec beaucoup de réussite et ne peuvent faire l'objet d'une quelconque optimisation dans cette analyse.

L'autre problème lié aux parois est d'ordre chimique, c'est-à-dire celui de la destruction des radicaux libres sur la surface des parois, empêchant de ce fait l'auto ignition des réactifs froids. En 2006, Kim, K. T. *et al* proposent une étude expérimentale permettant de comprendre les effets thermique et chimique de l'interaction surface-flamme sur l'extinction de la micro flamme [47]. Ils parviennent à la conclusion que, à très haute température (ce qui est le cas pour une combustion homogène dans un micro réacteur), la destruction des radicaux libres joue un rôle prépondérant. Ce constat a emmené les chercheurs à procéder à un traitement particulier des parois avant les séances d'expérimentation. Depuis quelques années, les matériaux conçus et utilisés comme parois des micros réacteurs ne posent plus ces problèmes et la recherche ne s'y attarde plus.

Le problème d'optimisation de la grandeur d'entrée des réactifs, est donc lié en grande partie à l'interaction thermique entre la flamme et la paroi, l'interaction chimique entre les espèces dans une flamme et à l'interaction dynamique entre un champ d'écoulement et une flamme. Ce problème suscite un intérêt scientifique croissant, et plusieurs concepts dans ce sens ont vu le jour, tel le concept d'ultra micro chambre de combustion de micro et pico satellites, distance sous critique, de mini turbine ou de dispositif personnel de production d'énergie, sans que jamais le terme nano combustion ne soit utilisé. En 2002 déjà, P.A. Pilavachi se propose d'étudier les mini et les micros turbines à gaz pour la production combinée d'énergie et de chaleur [150] En 2005 S. Yuasa. *et al.* étudient le concept et les caractéristiques de combustion d'une ultra micro chambre de combustion avec une flamme pré mélangée[151], où ils mettent de l'avant les méthodes de combustion convenables pour les ultra micros turbines à gaz dans l'optique de la fabrication d'un prototype. La même année, Kaoru Maruta. *et al.* se penchent sur l'analyse des caractéristiques de la combustion

dans un canal réduit avec un gradient de température[31]. De telles études vont se multiplier visant à comprendre les obstacles qui subsistent à la réduction du gap d'entrée des réactifs en deçà du micro mètre [106, 133, 152]. Cependant en 2006 N.S. Kaisare, D.G. Vlachos font une étude d'optimisation des dimensions d'un micro réacteur pour une combustion homogène [22]. Les auteurs aboutissent à la conclusion que le gap optimal pour l'entrée de réactifs est de l'ordre de 600 μm pour un réacteur du type plug flow. Depuis lors, les dimensions n'ont cessé de diminuer pour atteindre 150 μm [7], à travers une étude expérimentale et numérique d'un pré mélange pauvre d'hydrogène et d'air menée par Zamashchikov, V. et Tikhomolov, E.[7]. Le prototype proposé est fait de deux disques de quartz.

Malgré l'intérêt très élevé ces cinq dernières années pour les micros systèmes électromécaniques, malgré la volonté des chercheurs de proposer des solutions permettant de concevoir des dispositifs de combustion de la micro production d'énergie avec des dimensions inférieures à 100 μm , à ce jour aucun nano réacteur n'a pu être testé et aucune étude expérimentale menée. A l'état des connaissances actuelles, la mise sur pied de nano réacteurs pose des problèmes d'ordre technologique, qui sont liés à la construction d'un tel dispositif, surtout qu'il doit être équipé de systèmes d'injection du mélange réactif, de conversion d'énergie. Sur un point de vue physique, la réduction des dimensions de la chambre de combustion à l'échelle nanoscopique est sujette à une probabilité élevée à ne plus être en droit d'utiliser les équations de Navier stokes permettant une étude numérique d'un tel écoulement.

Cependant, la volonté de se doter de nano générateurs d'énergie (NPG), fortement moins encombrant et offrant un si grand potentiel énergétique est perceptible au travers de

la recherche. Par exemple plusieurs études suggèrent aujourd'hui l'utilisation des nano matériaux sensés améliorer la combustion dans un si petit espace de confinement en favorisant l'ignition du mélange réactif. C'est ainsi que plusieurs nano systèmes électromécaniques (NEMS) ont vu le jour [153-156]. Cependant ces études sont encore à leurs balbutiements et n'ont pas encore été testées pour la combustion.

L'objectif de ce chapitre est de faire une étude d'optimisation à travers un micro réacteur modèle rectangulaire. Un pré mélange de méthane/air est utilisé comme fluide réactif, le mécanisme de cinétique chimique utilisé dans le cadre de cette étude est constitué d'un modèle de cinétique chimique simplifiée à une équation globale tirée des travaux de Westbrook et Dryer [93]. La méthode utilisée consiste à faire une analyse des nombres adimensionnels liés aux différentes équations de conservation, de transport et de transfert d'espèces régissant les écoulements réactifs, de simuler selon les dimensions d'entrée du réacteur la formation d'une flamme de combustion. En outre, on explorera la possibilité de l'utilisation des nano matériaux pour la production d'une telle nano flamme.

7.3 Méthodologie

Les grandeurs caractéristiques des micros réacteurs fabriqués à ce jour, où ceux qui ont fait l'objet de projets d'étude, sont suffisamment larges par rapport au libre parcours moyen moléculaire de l'air ou d'autres gaz [3]. De ce fait, le comportement physique et chimique des fluides réactifs s'écoulant à travers ces dispositifs est fondamentalement le même que celui des fluides dans leurs homologues macroscopiques. Ils respectent donc les équations des Navier Stokes. Par exemple, le nombre de Knudsen (Kn) de l'air, dans les conditions normales de température et de pression, s'écoulant à travers un canal de diamètre hydraulique de $100\mu\text{m}$ est de l'ordre de 10^{-3} . Ceci est largement inférieur au nombre de

Knudsen d'un écoulement libre de molécules donnant $Kn > 1$ [22], ce qui laisse à penser de la légitimité de l'étude de la nano combustion à l'aide des équations régissant l'écoulement des fluides. Par conséquent les hypothèses standard de mécanique de fluides tels que la continuité, la conservation de la quantité de mouvement, les conditions de non glissement sur les parois sont toujours applicables.

Cependant en pratique, il faut dire que la diminution des dimensions du micro réacteur est à l'origine de plusieurs problèmes qui rendent presque impossible la combustion, dans des dispositifs ayant des dimensions inférieures aux dimensions critiques (dimensions d'extinction) de l'ordre de $150\mu\text{m}$ à l'heure actuelle. Les effets de cette diminution ne sont pas perceptibles fondamentalement sur le plan chimique, particulièrement dans le cas des flammes pré mélangées, on peut donc appliquer les mêmes cinétiques (simplifiées ou détaillées). En revanche, la mécanique de fluide, le transfert de chaleur et le transport d'espèces seront profondément modifiés.

L'étude que nous menons est faite par rapport à notre réacteur modèle utilisé dans tout notre travail, de forme rectangulaire (plug flow) et représenté en trois dimensions sur la figure suivante.

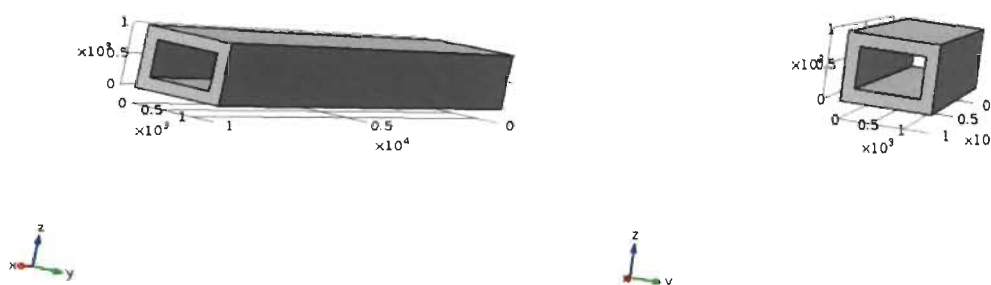
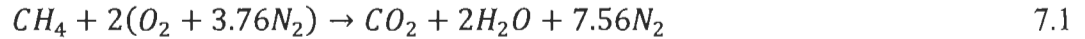


Figure 7.1 Vue d'ensemble du Modèle géométrique du micro réacteur en 3D

7.3.1 Cinétique chimique

Afin d'examiner l'effet de la diminution des dimensions du micro réacteurs et particulièrement celle d'entrée des réactifs, sur la structure de la flamme, un modèle simplifié de cinétique chimique à une réaction globale a été utilisé. Ce choix est raisonnable, car il est connu que même une réaction en une seule étape peut présenter les effets de perturbations externes, comme cela est expliqué par Williams [157]. Un mélange stœchiométrique d'air et de méthane a été choisi à cet effet. L'équation de combustion et le taux de réactions sont donnés par les expressions suivantes :



$$R_{CH_4}(kmol/m^3/s) = 2.119 * 10^{11} \exp\left(\frac{-2.027 * 10^8 (\frac{J}{kmol})}{RT}\right) [c_{CH_4}]^{0.2} [c_{O_2}]^{1.3} \quad 7.2$$

7.3.2 Modèle numérique

Certains problèmes liés à l'échelle des micros réacteurs, peuvent être analysés par une normalisation des équations de conservation de quantité de mouvement, d'énergie et de transport d'espèces en termes de nombres adimensionnels, mettant en relation les grandeurs caractéristiques du micro réacteurs et de l'espace d'écoulement. Les équations normalisées à 1D régissant les écoulements réactifs peuvent être écrites comme suit;

$$\frac{l_c}{t_c u_c} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{t}} + \bar{u} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{x}} = -\frac{p_c}{\rho_c u_c^2} \frac{1}{\bar{\rho}} \frac{\partial \bar{p}}{\partial \bar{x}} + \frac{1}{Re} \bar{v} \frac{\partial^2 \bar{u}}{\partial \bar{x}^2} + \frac{gl_c}{u_c^2} \quad 7.3$$

$$\frac{l_c}{t_c u_c} \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{t}} + \bar{u} \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{x}} = \frac{1}{Pe} \bar{\alpha} \frac{\partial^2 \bar{T}}{\partial \bar{x}^2} + Da \frac{Q}{c_p T_e} \bar{W}'' \quad 7.4$$

$$\frac{l_c}{t_c u_c} \frac{\partial \bar{Y}_i}{\partial \bar{t}} + \bar{u} \frac{\partial \bar{Y}_i}{\partial \bar{x}} = \frac{1}{LePe} \bar{D} \frac{\partial^2 \bar{Y}_i}{\partial \bar{x}^2} + Da \frac{1}{Y_{ic}} \bar{W}'' \quad 7.5$$

$$\frac{\partial \bar{T}_s}{\partial \bar{t}} = Fo \bar{\alpha}_s \frac{\partial^2 \bar{T}_s}{\partial \bar{x}^2} \quad 7.6$$

Les conditions limites pour ces équations peuvent s'exprimer comme suit;

$$\bar{u} = 0, \bar{\tau} = \frac{\mu_c u_c}{\tau_c l_c} \bar{\mu} \frac{\partial \bar{u}}{\partial \bar{x}} \quad 7.7$$

$$\bar{T} = \bar{T}_w, \lambda_c \frac{\partial \bar{T}_s}{\partial \bar{x}} = \lambda \frac{\partial \bar{T}}{\partial \bar{x}}, \frac{\partial \bar{T}_s}{\partial \bar{x}} = Bi(\bar{T}_s - 1) \quad 7.8$$

$$\bar{Y}_i = 0, \frac{\partial \bar{Y}_i}{\partial \bar{x}} = (LePe) \bar{Y}_i \quad 7.9$$

7.3.2.1 Production d'une micro flamme dans un réacteur rectangulaire

Une flamme de combustion se propage sur une distance encore appelée zone de réaction, ou épaisseur de la flamme (cf Chap 4), cette distance est celle qui permet les échanges de chaleur dans le micro réacteur dont on a montré toute l'importance au chapitre 3. Selon Mallard et Le Chatelier[158], la vitesse de la flamme est proportionnelle à la racine carré du produit de la diffusivité thermique $k_r / \rho C_p$ des réactifs froids entrants et du taux de réaction RR. On peut donc écrire la vitesse de la flamme sous la forme;

$$S_L = \sqrt{\frac{k_r}{\rho C_p} \frac{T_f - T_i}{T_i - T_0} RR} \quad 7.10$$

Dans cette expression, T_f , T_i , T_0 sont respectivement la température de la flamme, d'ignition et des réactifs froids.

Soit les profils de température et d'énergies dans le micro réacteur représenté par les figures suivantes.

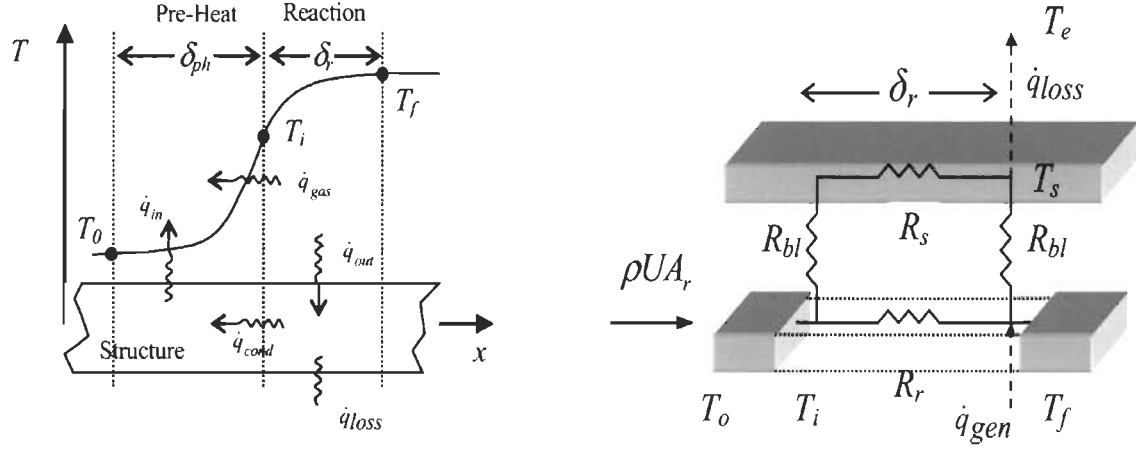


Figure 7.2 (a) Distribution d'énergie de combustion dans un micro réacteur et (b) analogie électrique[15]

L'énergie générée par une flamme dans un micro réacteur est distribuée sous trois vecteurs :

- L'énergie transmise par conduction par les molécules du fluide réactif dans la zone de réaction;

$$Q_{gas} = k_r A_r \frac{\partial T}{\partial x} \rightarrow \Delta T = \frac{\delta_r}{k_r A_r} Q_{gas} \quad 7.11$$

- L'énergie transmise aux parois par convection par le fluide réactif,

$$Q_{conv} = h A_{conv} \Delta T, \quad 7.12$$

$$\text{Et } Nu = \frac{h.H}{k_r} \quad 7.13$$

H est la hauteur d'entrée du réacteur ou gap.

$$\text{d'où, } \Delta T = \frac{H}{Nuk_r A_{conv}} Q_{conv} \quad 7.14$$

- L'énergie transmise par conduction dans les parois,

$$Q_s = k_s A_s \frac{\partial T}{\partial x} \rightarrow \Delta T = \frac{\delta_r}{k_s A_s} Q_s \quad 7.15$$

Une simple analogie électrique $\Delta U = RI$ permet d'obtenir les résistances thermiques équivalentes, illustrées dans la figure précédente par R_s , R_{bl} , R_r .

$$R_r = \frac{\delta_r}{k_r A_r}, R_s = \frac{\delta_r}{k_s A_s}, R_{bl} = \frac{2H}{Nuk_g A_{conv}} \quad 7.16$$

Normalement, l'épaisseur de la zone de réaction est donnée par le rapport de la vitesse et du taux de réaction qui est l'inverse du temps de consommation de combustible, on a donc dans le cas d'un écoulement en jet libre l'expression de l'épaisseur de la zone de réaction,

$$\delta_r = \frac{s_L}{RR} \rightarrow \delta_r = \frac{\sqrt{\frac{k_r}{\rho C_p} \frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}} \frac{1}{RR}}{RR} = \sqrt{\frac{k_r}{\rho C_p} \frac{T_f - T_i}{T_i - T_0} \frac{1}{RR}} \quad 7.17$$

Cependant, dans le cas de la micro combustion, il faut tenir compte de la distribution d'énergie telle que démontrée plus haut qui tient compte de l'effet prédominant voir crucial des parois sur la stabilité de la flamme, sa formation et les différentes températures mises en jeu, de ce fait on exprimera donc δ_r ;

$$\delta_r = \sqrt{\beta \frac{k_r}{\rho C_p} \frac{T_f - T_i}{T_i - T_0} \frac{1}{RR}} \quad 7.18$$

β est un paramètre qui tient compte du fait que l'expression de l'épaisseur de la flamme ne peut plus être la même que celle du jet libre, elle sera fonction inéluctablement d'un paramètre qui déterminera l'ordre de grandeur de la zone de réaction. S'il est supérieur à l'unité ($\beta > 1$) la zone de réaction sera élargie et son importance sera un bon indicatif sur la possibilité d'un blowout, tandis que si sa valeur est inférieure à l'unité ($\beta < 1$), la zone de réaction sera réduite et laissera présager d'un flash back et donc sera un bon indicateur des conditions ne permettant plus à la flamme d'être produite. Dans le cas où β est égale à l'unité on retrouvera alors l'épaisseur de la flamme d'un jet libre ($\beta = 1$). Le paramètre β nous permettra d'optimiser les dimensions du réacteur et de prédire l'existence même de la flamme.

β de manière physique représente un nombre adimensionnel qui est le rapport de la résistance équivalente et de celle de la flamme, le circuit que nous avons présenté à la **figure 7.2** (b) est équivalent au circuit thermoélectrique de la **figure 7.3**.

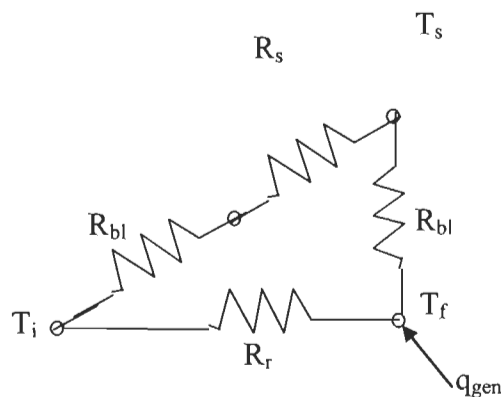


Figure 7.3 Circuit équivalent permettant de calculer la résistance équivalente β

Le schéma ci-dessus permet d'avoir la résistance équivalente tel que R_r soit en parallèle avec les résistances en série ($R_{bl} + R_s + R_{bl}$).

On peut donc écrire
$$\frac{1}{R_{eq}} = \frac{1}{R_r} + \frac{1}{(R_s + 2R_{bl})} \quad 7.19$$

$$\frac{1}{R_{eq}} = \frac{R_r(R_s + 2R_{bl})}{R_r + R_s + 2R_{bl}} \quad 7.20$$

$$\frac{1}{R_{eq}} = \frac{R_r \frac{R_s}{R_r} + 2R_r \frac{R_{bl}}{R_r}}{1 + \frac{R_s}{R_r} + 2\frac{R_{bl}}{R_r}} \quad 7.21$$

$$\beta = \frac{1 + \zeta \lambda \left(1 + \frac{2H^2}{\delta_r^2} \frac{1}{Nu}\right)}{1 + 2\zeta \lambda \frac{H^2}{\delta_r^2} \frac{1}{Nu}} \quad 7.22$$

Avec $\lambda = \frac{k_s}{k_r}$, $\zeta = \frac{2e}{H}$ e est l'épaisseur de la paroi du micro réacteur.

De l'équation 7.16 on peut exprimer β , tel que;

$$\beta = \frac{\delta_r^2}{\left(\frac{k_r}{\rho C_p}\right) \left(\frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}\right) \frac{1}{RR}} \quad 7.23$$

L'égalité entre les équations 7.17 et 7.18 permet d'exprimer l'épaisseur de la zone de réaction ou épaisseur de la flamme sous la forme;

$$\delta_r^4 + \left(2\zeta \lambda \frac{H^2}{Nu} - (1 + \zeta \lambda) \left(\frac{k_r}{\rho C_p}\right) \left(\frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}\right) \frac{1}{RR}\right) \delta_r^2 - 2\zeta \lambda \frac{H^2}{Nu} \left(\frac{k_r}{\rho C_p}\right) \left(\frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}\right) \frac{1}{RR} = 0 \quad 7.24$$

$$\delta_r^4 + \left(4e \frac{k_s}{k_r} \frac{H}{Nu} - \left(1 + \frac{2e}{H} \frac{k_s}{k_r}\right) \left(\frac{k_r}{\rho C_p}\right) \left(\frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}\right) \frac{1}{RR}\right) \delta_r^2 - 4e \frac{k_s}{k_r} \frac{H}{Nu} \left(\frac{k_r}{\rho C_p}\right) \left(\frac{T_f - T_i}{T_i - T_0}\right) \frac{1}{RR} = 0$$

$$7.25$$

- RR est le taux de réaction et sera de la forme de l'équation 7.2
- Le nombre de Nu sera fonction de deux autres nombres adimensionnels, le nombre de Reynolds pour caractériser l'écoulement et le nombre de Knudsen pour s'assurer à chaque étape de la simulation que les équations qui régissent les écoulements réactifs sont en tout temps applicables.

$$\text{On a donc : } Nu = 7,86e^{-3,86Kn} \quad 7.26$$

Le nombre de Knudsen est donné par l'expression

$$Kn = \frac{\bar{l}}{H} \quad 7.27$$

$$\bar{l} = \frac{RT}{\sqrt{2}N_oP\sigma_{AA}} \quad 7.28$$

Avec \bar{l} qui est le libre parcours moyen moléculaire. H est le gap d'entrée du réacteur. R est la constante des gaz parfaits, T et P sont respectivement la température et la pression dans les conditions normales de température et de pression (298° K, 10^5 Pa), $N_o = 6,02214 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ est le nombre d'Avogadro, σ_{AA} surface d'une molécule. Dans nos travaux on donnera à \bar{l} une valeur de 70 nm qui est la valeur du libre parcours moyen de l'Azote.

Le tableau de la page suivante permet de caractériser le type d'écoulement suivant l'ordre de grandeur du nombre de Knudsen.

Tableau 7.1 Régimes d'écoulement associés à un ordre de grandeur du nombre de Knudsen [15]

Régimes d'écoulement	
$Kn < 0,01$	Continuité
$0,01 < Kn < 0,1$	Non glissement
$0,1 < Kn < 10$	Transitoire
$10 < Kn$	Molécules libres

Pour un régime d'écoulement laminaire le nombre de Nusselt varie suivant deux variables, la quantité d'énergie produite et la température des parois; pour une quantité d'énergie constante le nombre de Nusselt est égal à 4,36. Dans le cas de la température des parois constante, il est égal à 3,66 [159]. Les simulations consisteront donc à comparer la valeur du nombre de Nusselt obtenu par 7.21 à $Nu = 4$, la valeur moyenne du nombre de Nusselt.

Cette étude montre que la chaleur dans la zone de réaction, comme tout au long du parcours des réactifs (longueur du réacteur), la chaleur est échangée à la fois entre les produits réactifs par conduction et avec les parois par convection. Cependant, l'expérience montre que la réduction du gap d'entrée des réactifs promeut les échanges de chaleur par diffusion, on pourra donc exprimer la grandeur d'entrée de réactifs en tenant compte de la diffusion massique.

7.3.2.2 Variation de la grandeur d'entrée avec la diffusion massique

Les écoulements avec les réactions chimiques sont beaucoup plus complexes que les écoulements non réactifs. Pour qu'un écoulement soit pleinement développé, il y a deux façons de le voir: hydrodynamique et thermique. Un écoulement hydrodynamique pleinement développé nécessite un profil de vitesse radiale qui se rapproche du profil de Hagen-Poiseuille, tandis qu'un écoulement thermiquement pleinement développé nécessite la réalisation d'une distribution de température radialement uniforme[107]. En raison des réactions qui ont lieu le long du trajet d'écoulement, il est prévu que ces deux critères ne soient pas remplis à la même position axiale. Pour des écoulements non réactifs, la grandeur d'entrée hydrodynamique est donnée par[160] et son expression est de la forme :

$$Le = 0,05.Re.d \quad 7.29$$

Le est le nombre de Lewis, Re le nombre de Reynolds et d le diamètre du réacteur tubulaire. Cette relation a été développée pour une conduite cylindrique et par analogie on peut la généraliser dans notre cas;

$$Le = 0,05.Re.D_h \quad 7.30$$

À la suite de la production de la chaleur par la réaction, la température des gaz subit des changements importants tout en s'écoulant à travers la micro-chambre de combustion, en donnant lieu à la variation des propriétés du mélange. Ainsi, il est nécessaire de modifier le nombre de Reynolds qui est évalué au niveau du gap d'entrée. La théorie cinétique des propriétés de transport donne :

$$\widetilde{Le} = 0,05. \widetilde{Re}. D_h \quad 7.31$$

Les dimensions étant de l'ordre du micromètre, on approximera le diamètre hydraulique au gap d'entrée des réactifs H par :

$$\widetilde{Le} = 0,05. \widetilde{Re}_0. \sqrt{\frac{2T_0}{T_0+T_f}} D_h \quad 7.32$$

$$H = \frac{\widetilde{Le}}{0,05. \widetilde{Re}_0. \sqrt{\frac{2T_0}{T_0+T_f}}} \quad 7.33$$

\widetilde{Re}_0 est le nombre de Reynolds évalué sur la base des propriétés thermo physiques du fluide à l'entrée du micro réacteur.

Dans le cas de la micro combustion, la chaleur diffuse radialement vers le centre du micro réacteur, tel que la position de la température maximale de la flamme soit le fait principalement de l'aérodynamique (gap d'entrée) et dans un certains sens de la cinétique chimique[107]. Dans le cas du mélange méthane/air, la vitesse d'entrée des réactifs est faible (0,4-0,8 m/s), le nombre de Lewis (Le) sensiblement égal à l'unité (Le=1) et avec une diffusivité massique faible, il est possible de comparer l'importance de la diffusion (direction radiale) à la convection (direction axiale).

Si on compare le temps caractéristique de la convection axiale et celui de la diffusion radiale, on obtient :

$$\tau_C \sim \frac{l}{u_0} \quad 7.34$$

$$\tau_D \sim \frac{(H/2)^2}{D} \quad 7.35$$

$$\frac{\tau_C}{\tau_D} = \frac{l}{u_0} \frac{4D}{H^2}, \quad Da = \frac{4l}{H} \frac{1}{Sc\widetilde{Re}_0} \quad 7.36$$

$$H = \frac{4l}{DaSc\widetilde{Re}_0} \quad 7.37$$

Trois expressions sont susceptibles de donner l'ordre de grandeur de H , les équations 7.20, 7.28 et 7.32. La première équation permettra de faire une étude d'optimisation des dimensions, les deux autres de vérifier la pertinence des résultats obtenus.

7.4 Résultats et discussion

Plusieurs paramètres permettent l'analyse de la combustion dans un réacteur à savoir la température dans le milieu d'écoulement, la disparition ou la production des espèces, mais aussi l'ordre de grandeur de la zone de réaction. Dans l'étude de l'optimisation du gap d'entrée des réactifs dans un modèle tubulaire de micro réacteur nous avons choisi comme paramètres d'analyse l'épaisseur de la zone de réaction.

Le modèle de l'équation 7.22 a été simulé, c'est une équation d'ordre quatre qui lie l'épaisseur de la flamme à la grandeur de l'entrée des réactifs. Quatre solutions potentielles sont obtenues par ce modèle. Seules les solutions positives ont été retenues. À partir de ces solutions, l'intervalle des valeurs de l'écart (gap) recherché est de $100\mu\text{m} < H < 600\mu\text{m}$, a été exploré. Des solutions possibles minimales et maximales de l'épaisseur de la flamme en fonction de la dimension d'entrée des réactifs (gap) ont été obtenues.

Les conditions expérimentales de simulation de cette étude sont résumées sur le tableau suivant :

- Calcul du ratio équivalent par rapport à l'équation 7.2

	$C_{CH_4} \text{ (mol/m}^3\text{)}$	$C_{O_2} \text{ (mol/m}^3\text{)}$	$T(K)$
Valeurs considérées	$42,38.10^{-3}$	$84,77.10^{-3}$	2234

- Calcul de l'épaisseur de la flamme en fonction du gap par rapport à l'équation 7.25:

	$T_0(K)$	$T_i(K)$	$T_f(K)$	k_r	k_s	$e(\mu m)$	$\rho(kg/m^3)$	C_p	Nu
Valeurs Considérées	300	1200	1900	0.21	10	200	2043	3.416	4

La **figure 7.4(a)** présente l'épaisseur minimale d'une flamme qu'il est possible d'obtenir lorsque que H varie de $[100\mu m - 600 \mu m]$, l'ordre de grandeur de ces épaisseurs varie entre $[50 \mu m - 300 \mu m]$, soit entre $[0.05 \text{ mm} - 0.3 \text{ mm}]$. Il est à noter que l'épaisseur d'une flamme dans un jet libre est de 0.42mm . La valeur minimale de l'épaisseur d'une flamme signifie que nous sommes en présence d'un rétrécissement de la zone de réaction et donc potentiellement d'un flash back. Cependant elle démontre que même dans ces conditions la flamme peut exister, ce qui signifie clairement qu'il est possible de produire une nano flamme avec un réacteur dont la dimension d'entrée des réactifs serait égale à $100\mu m$.

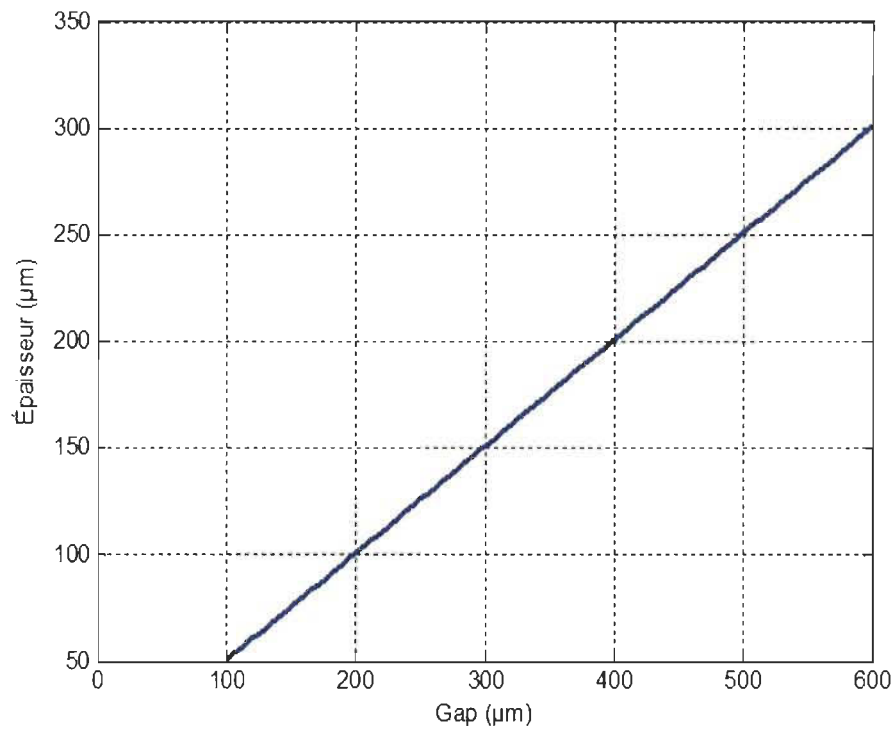


Figure 7.4 (a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire pour une épaisseur des parois de 200 μm .

La courbe obtenue ici est quasiment linéaire, cette forme s'explique par le fait que les dimensions sont très, très faibles. Le régime d'écoulement est fortement laminaire et donc la flamme s'auto maintient par l'action des parois.

La **figure 7.5** donne le profil de l'épaisseur maximale de la flamme lorsque le gap d'entrée varie dans les mêmes conditions que précédemment. L'ordre de grandeur des résultats obtenus montre que la flamme subit un élargissement important, supérieur à la longueur du réacteur de $1.10^4 \mu\text{m}$, on est donc en présence du « blowout ». L'épaisseur des flammes obtenues varie entre $[1,4.10^4 \mu\text{m} - 3,5.10^4 \mu\text{m}]$, soit $[14 \text{ mm} - 35 \text{ mm}]$. Ces résultats peuvent s'obtenir dans le cas d'un allongement de la zone de réaction, phénomène qu'on observe régulièrement en micro combustion.

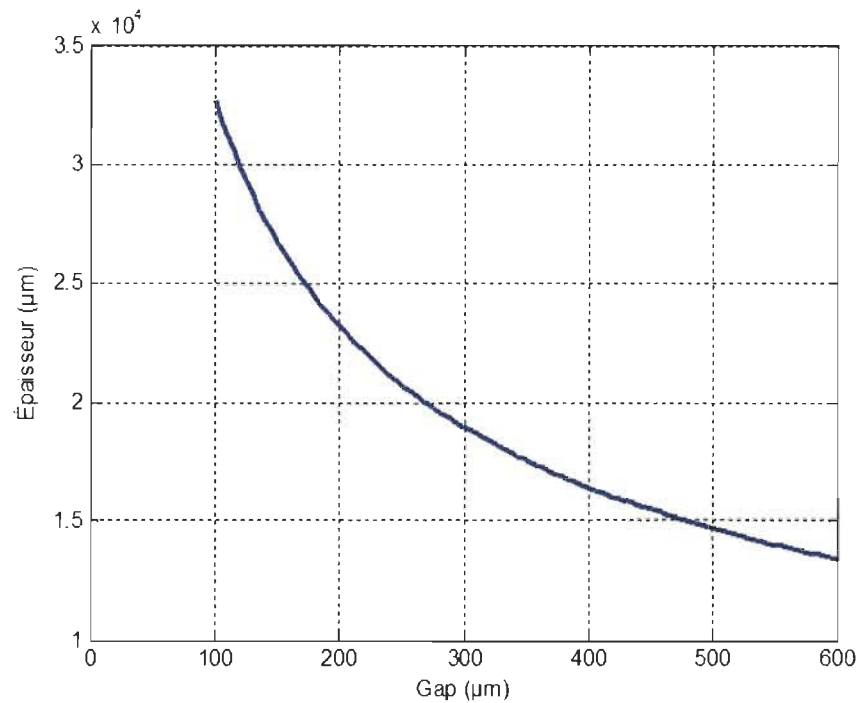


Figure 7.4 (b) Épaisseur maximale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire pour une épaisseur des parois de 200 μm.

L'épaisseur de la flamme dépendant de plusieurs facteurs comme nous l'avons établi à travers les équations 7.22, 7.23, 7.24. L'effet de l'épaisseur des parois sur l'épaisseur de la flamme a été étudiée.

7.4.1 Influence de l'épaisseur des parois sur la zone de réaction

Les simulations effectuées précédemment l'ont été avec une épaisseur des parois fixée à 200, cette épaisseur est celle utilisée dans toutes nos simulations dans les chapitres précédents.

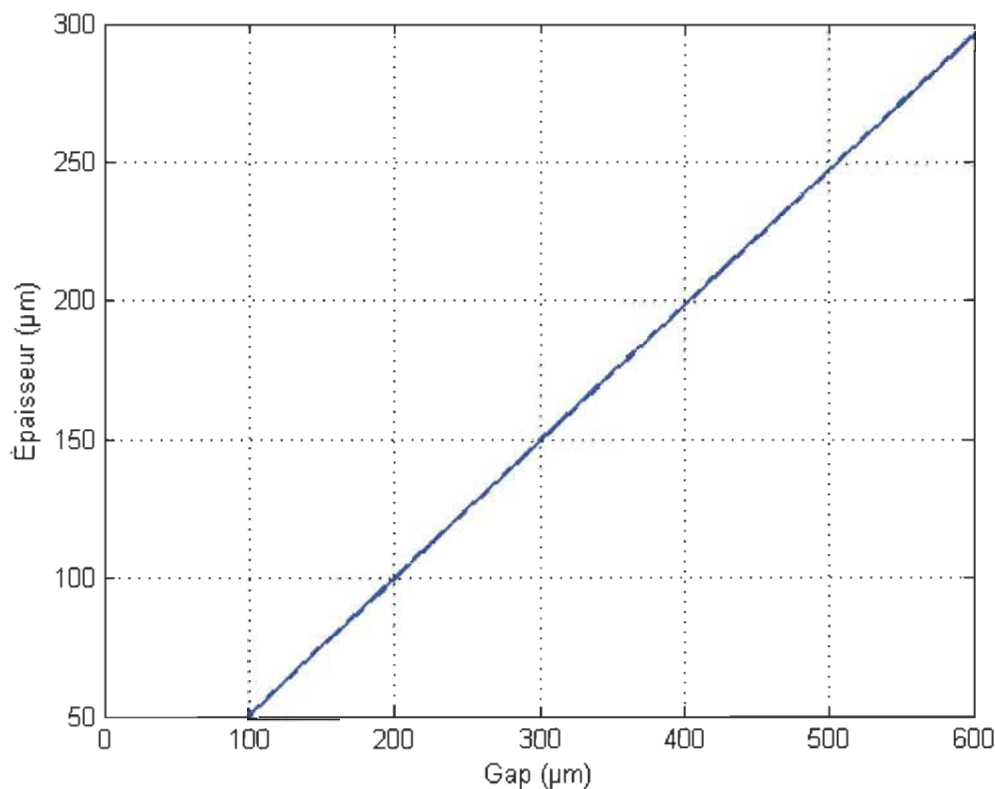


Figure 7.5 (a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur de 100 μm .

La **figure 7.5 (a)** comparativement à la **figure 7.4 (a)** montre que la diminution de l'épaisseur des parois ne joue pas un rôle significatif sur l'épaisseur de la zone de réaction dans le cas des parois adiabatiques, il n'y a donc pas un intérêt à baisser la dimension des parois d'un micro réacteur, surtout lorsqu'on sait qu'en le faisant on peut faire face à la détérioration des parois au vu des températures élevées qui y règnent.

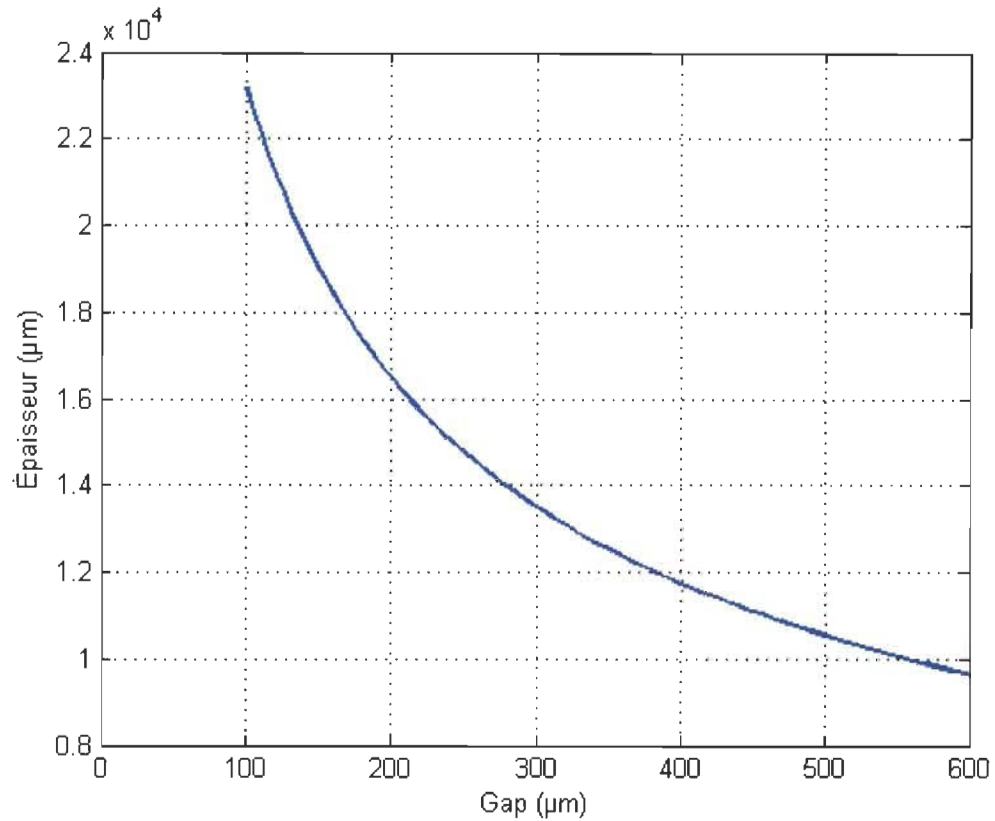


Figure 7.5 (b) Épaisseur maximale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur des parois de 100 μm.

En revanche la **figure 7.5 (b)** montre que la diminution des parois d'un micro réacteur diminue la zone de réaction maximale qui pouvait être obtenue. Cette diminution est sensible dans la mesure où l'épaisseur de la flamme dans ce cas est de $[0,9 \cdot 10^4 \mu\text{m} - 2,4 \cdot 10^4 \mu\text{m}]$, une diminution d'au moins 30%, ce qui est considérable.

La **figure 7.6 (a)** présente le profil de l'ordre de grandeur minimale de l'épaisseur de la flamme dans le cas où l'épaisseur des parois est augmentée à 300 μm . Comme observé dans le cas de la diminution de l'épaisseur des parois, l'épaisseur minimale de la flamme n'est pas influencée par la variation de l'épaisseur des parois.

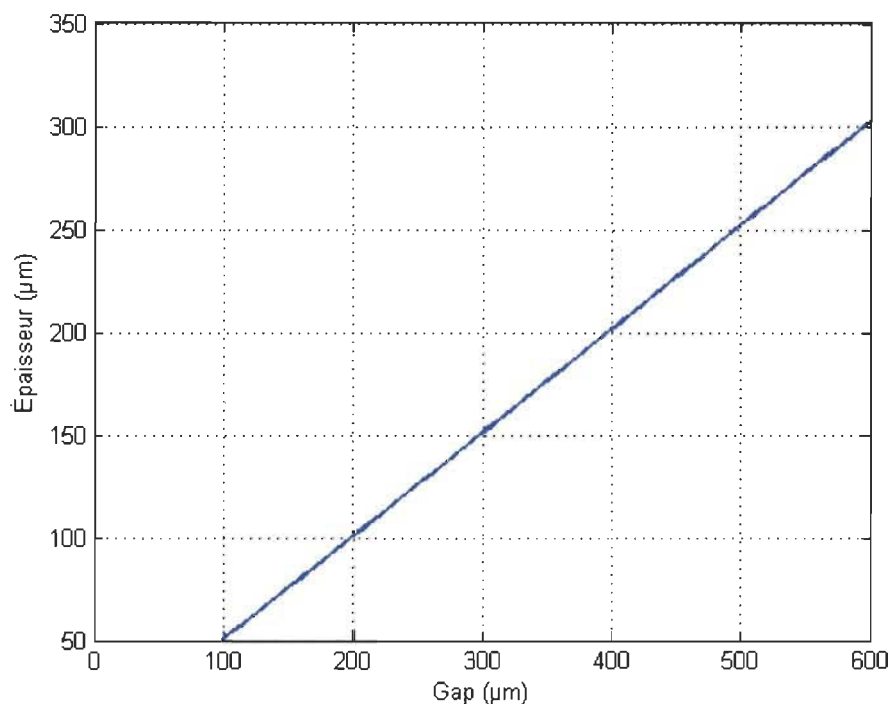


Figure 7.6 a) Épaisseur minimale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur de 300 μm .

La **figure 7.6 (b)** montre l'impact d'une augmentation de l'épaisseur des parois à 300 μm sur celle de la flamme qui s'allonge considérablement. Ce résultat est indicatif dans le sens où si les parois du micro réacteur étudié sont adiabatiques, augmenter l'épaisseur des parois conduirait à favoriser le blow out et donc à voir se développer la flamme hors du réacteur. Dans ce sens on peut déduire la grandeur de parcours des réactifs, la longueur en réalité du micro réacteur et dans un certains sens le temps de résidence des réactifs.

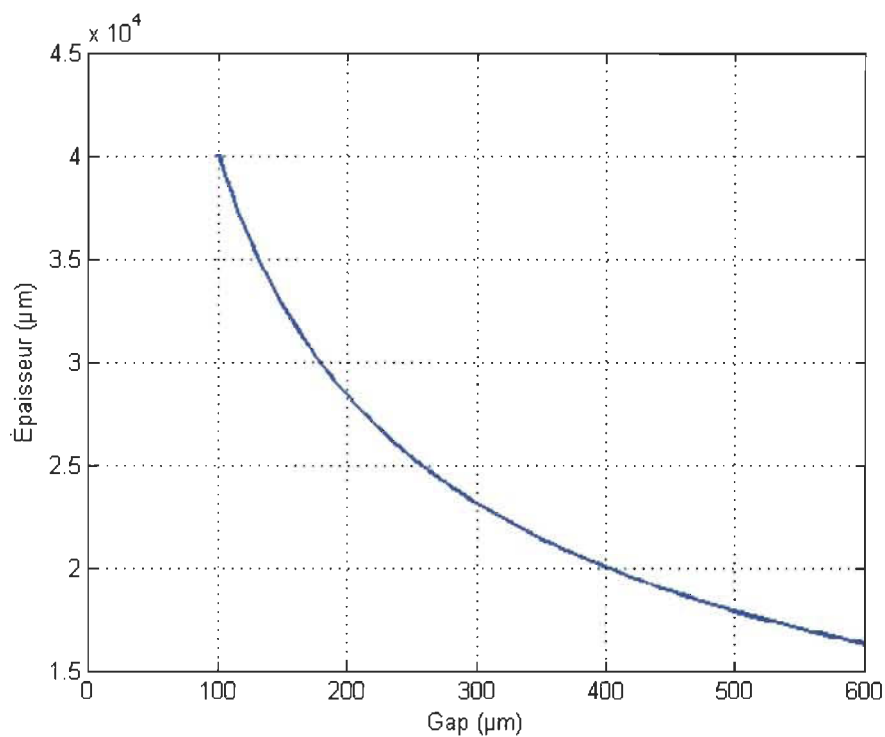


Figure 7.6 (b) Épaisseur maximale d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur des parois de 300 μm .

Ces simulations ont été faites pour des épaisseurs des parois variant de façon fixe dans le but de mieux interpréter les sens des résultats obtenus. Nous avons aussi fait varier les épaisseurs des parois par rapport à un balayage entre [100 μm - 300 μm]. En le faisant nous avons obtenu des résultats en 3D.

Les **figures 7.7 (a) et (b)** présentent de façon globale l'impact de la variation de la grandeur des parois sur l'épaisseur de la flamme.

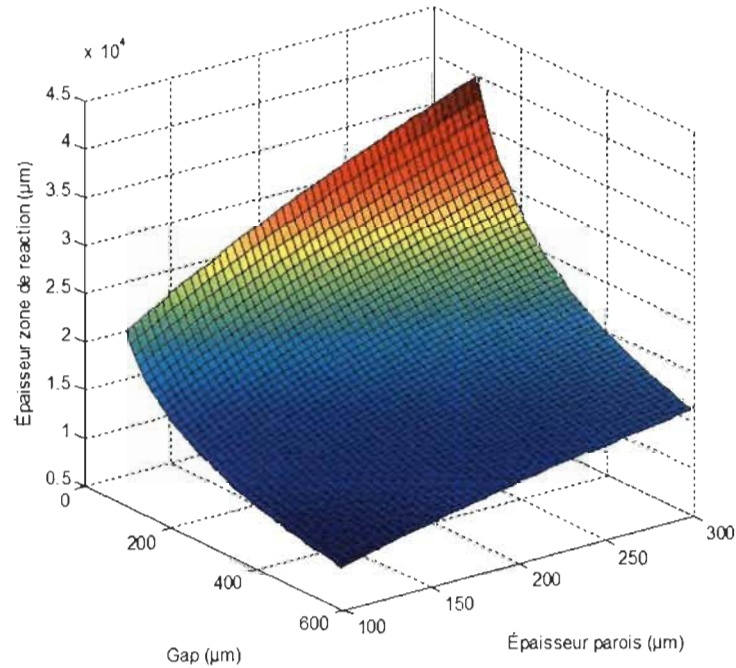
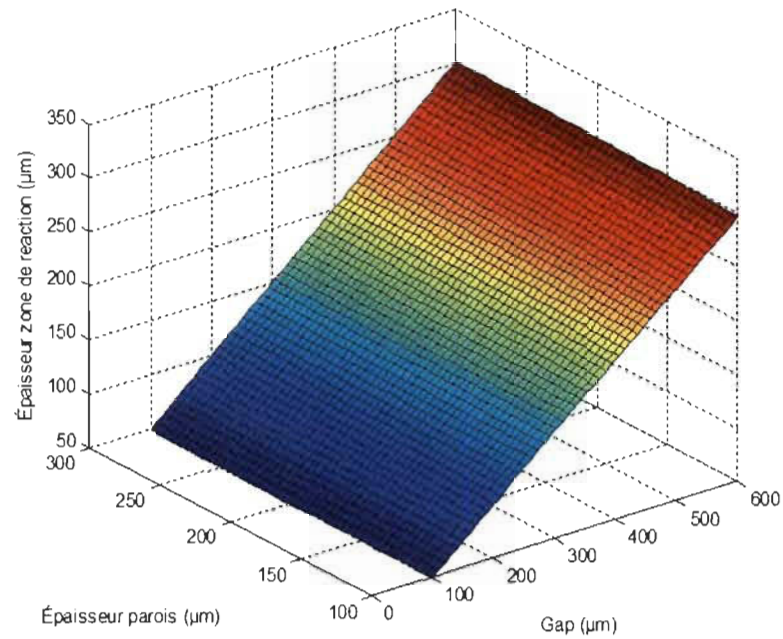
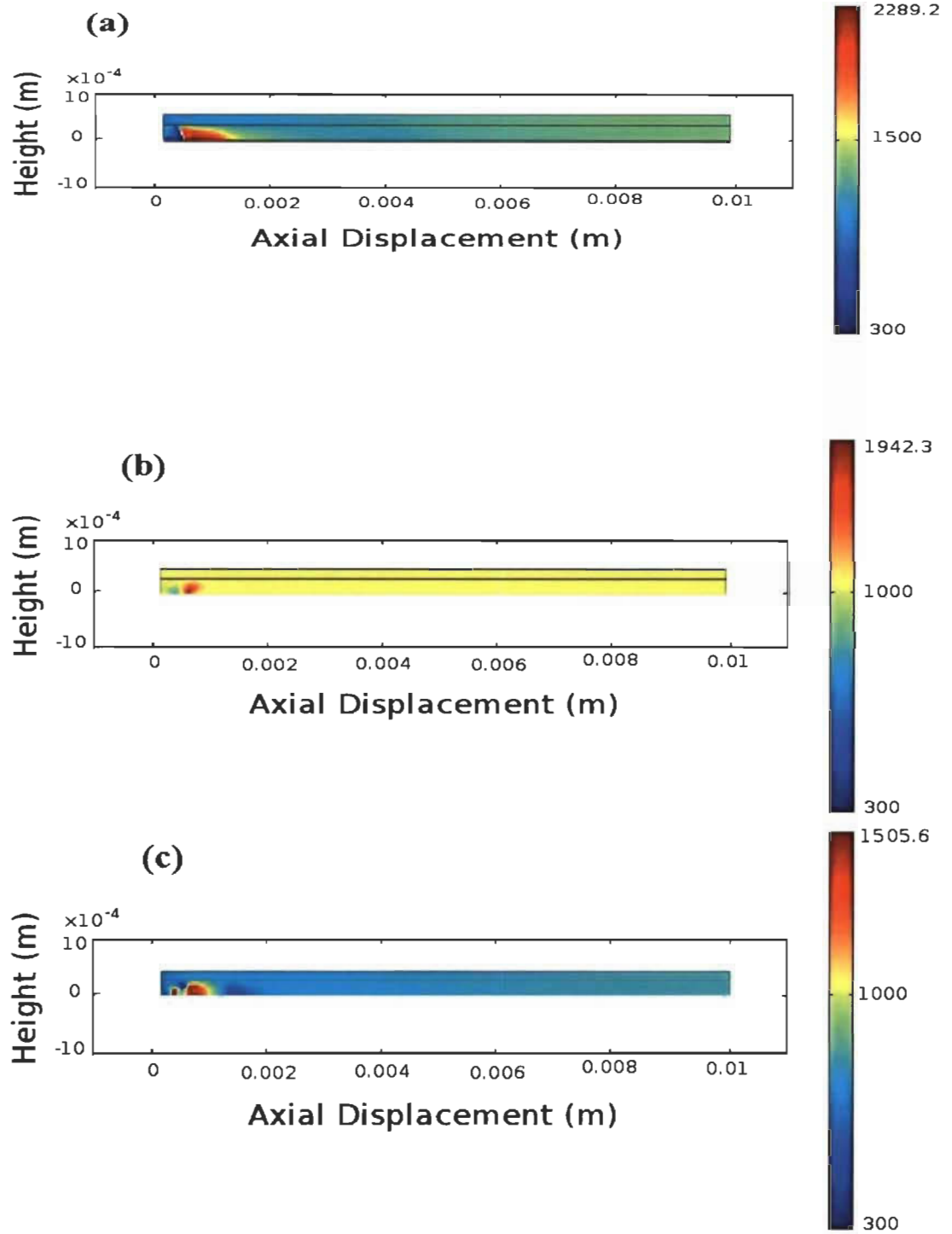


Figure 7.7 (a) Épaisseur minimale et (b) Épaisseur maximale, d'une flamme qui peut être produite dans un micro réacteur tubulaire avec une épaisseur variant entre $[100 \mu\text{m} - 300 \mu\text{m}]$.

7.4.2 Simulation de la nano flamme à l'aide de Comsol 4.2a

Après avoir obtenu les résultats de l'optimisation du gap d'entrée des réactifs (H) donnés par le modèle de l'équation (7.22), des simulations de la flamme comparativement à chaque valeur possible de H ont été réalisées. Les **figures 7.8 (a), (b), (c) et (d)** présentent les différentes flammes obtenues pour des valeurs de $H=600\text{ }\mu\text{m}$, $H=500\text{ }\mu\text{m}$, $H=450\text{ }\mu\text{m}$, $H=400\text{ }\mu\text{m}$. On observe que la diminution du gap d'entrée influence fortement la stabilité de la micro flamme. Pour $H=600\text{ }\mu\text{m}$, nous obtenons une flamme stable fixée à l'entrée du micro réacteur, la température de combustion tel que le montre la **figure 7.9** atteint son point maximal à $x = 0.0008\text{ m}$ pour une température de 2300 K environ : c'est un résultat conforme à ceux obtenus dans les chapitres 5 et 6. Lorsque $H=500\text{ }\mu\text{m}$, la température de combustion baisse à une valeur de 1900 K, la flamme est stable et de forme tulipe, déviée légèrement dans le sens d'écoulement, mais avec un fort dégagement d'énergie, ce qui explique que la température des fumées restent élevée de même que celle des parois. Cependant sur la **figure 7.8 (b)**, on peut observer déjà un reverse flow, c'est-à-dire la présence d'une infime quantité de fluide froid, ce qui explique une baisse subite de la température alors qu'elle commençait à augmenter. Cette tendance va se confirmer une fois pour une valeur du gap plus basse. Pour $H=450\text{ }\mu\text{m}$, on observe clairement la formation des cellules de flammes ce qui dénote des extinctions répétitives. La **figure 7.8 (c)** présente la flamme obtenue dans ce cas, il est tout de même à noter que les cellules de flammes observées avaient aussi été observées par D.G. Vlachos et *al.* [58], dans une étude expérimentale réalisée. Cependant, au vue du profil de température de la sortie du réactif, on observe que la flamme s'éteint, la température tournant autour de 700 K.



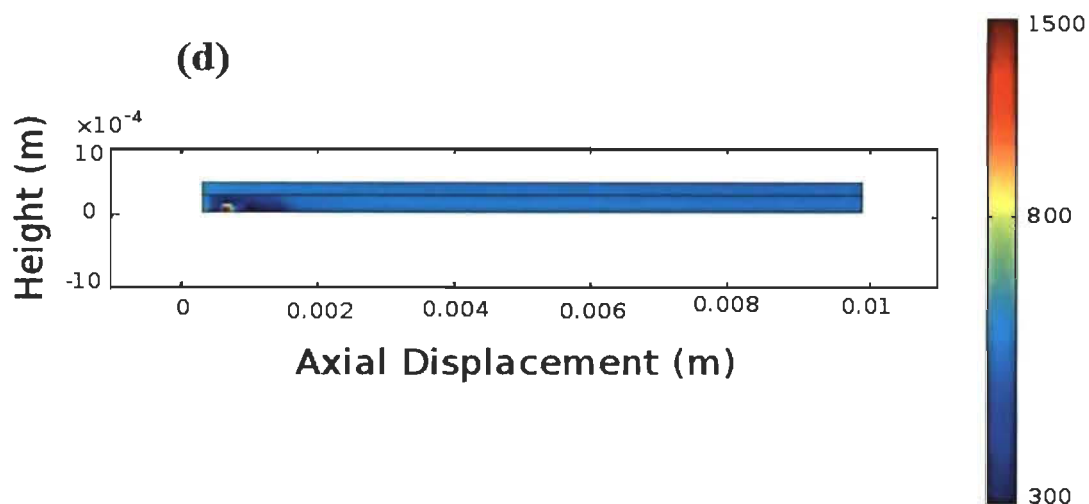


Figure 7.8 Flammées obtenues par simulation pour différentes grandeurs d'entrée des réactifs, **(a)** $H=600\ \mu\text{m}$, **(b)** $H=500\ \mu\text{m}$, **(c)** $H=450\ \mu\text{m}$ et **(d)** $H=400\ \mu\text{m}$

La figure 7.8 (d), montre la flamme obtenue pour $H=400\ \mu\text{m}$, on observe un point lumineux encapsulé dans un fluide froid, il est difficile dans ce cas de parler de flamme car, si la température maximale atteinte est tout de même de $1500\ \text{K}$, il est difficile de s'expliquer comment elle pourrait s'auto entretenir. En outre au vu des températures des parois et des produits de combustion on peut affirmer que dès l'allumage, la flamme s'éteint aussi tôt.

En 2007 N.S. Kaisare et D.G. Vlachos [22] ont publié un article sur les dimensions optimales d'un micro réacteur de forme rectangulaire; ils en sont arrivés à la conclusion que les dimensions optimales pour la production d'une micro flamme stable indépendamment du combustible utilisé sont comprises entre $600\ \mu\text{m}$ et $1000\ \mu\text{m}$. Cependant ils ont montré

qu'une flamme avec le propane comme combustible dans un micro réacteur de $400\ \mu\text{m}$ pouvait être produite.

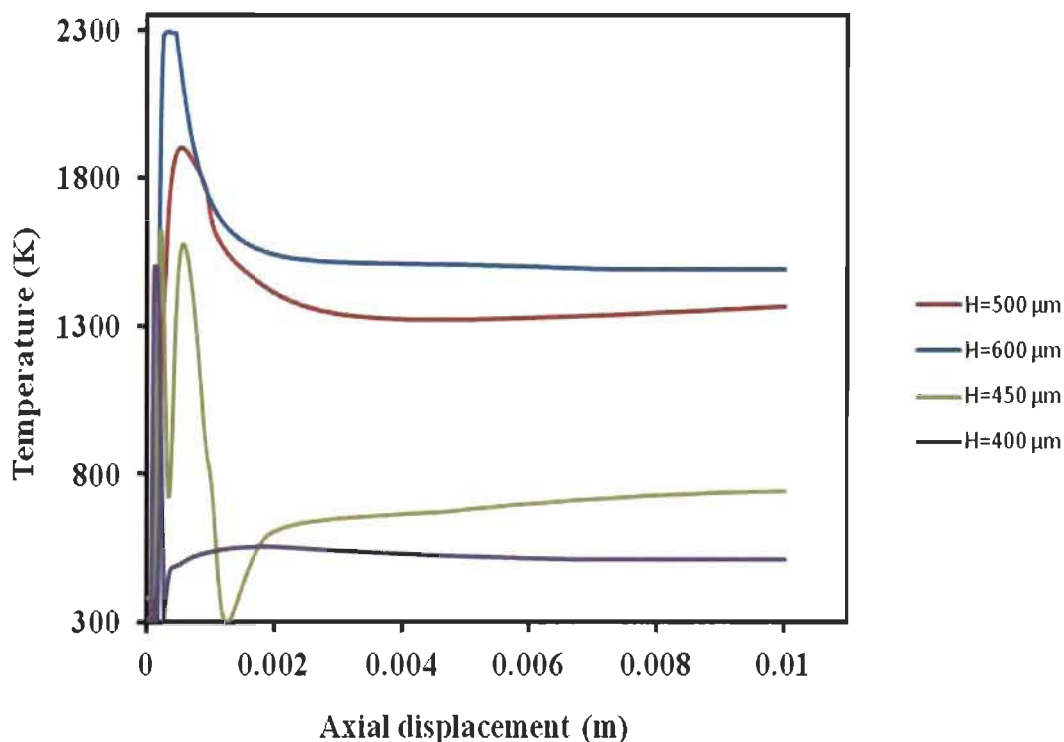


Figure 7.9 Profil de température axiale des flammes dans des micros réacteurs de dimensions d'entrée des réactifs, $H=600\ \mu\text{m}$, $H=500\ \mu\text{m}$, $H=450\ \mu\text{m}$ et $H=400\ \mu\text{m}$

Ce qui est encore beaucoup plus intéressant dans leur travail, c'est qu'il fixe la dimension minimale permettant l'obtention d'une micro flamme à partir du méthane à $500\ \mu\text{m}$; ceci semble corroborer les résultats de simulations obtenus dans cette étude-ci. Cependant il est tout de même à noter que l'étude a été menée en considérant, dans tous les cas étudiés, des parois adiabatiques, ce qui ne correspond pas à la réalité. Le ratio surface/volume dans un micro réacteur est très important lorsqu'on considère les pertes de chaleur à travers les parois. La production d'une micro flamme stable dans ce cas est bien plus difficile.

En outre plusieurs autres paramètres sont susceptibles d'être étudiés, la conductivité thermique des parois, la vitesse des réactifs, l'influence de la diffusivité thermique pour arriver à produire une nano flamme.

7.4.3 Nano matériaux, nano fluide et nano combustion

L'évolution des systèmes micro et nano fluidiques a été accompagnée par l'émergence de nouveaux phénomènes de transport de fluide et le potentiel des nouveaux dispositifs nano fluidiques[161]. Plusieurs articles actuellement mettent en lumière l'évolution de la recherche sur le transport et le comportement thermodynamique des micro et nano fluides. Les micro et nano fluides auraient d'une part l'avantage d'être adaptés pour le transport d'espèces dans des systèmes extrêmement petits contrairement aux fluides conventionnels, d'une autre part les techniques utilisées pour les nano matériaux pourraient être utilisés pour la fabrication des nano réacteurs. En outre il pourrait être possible d'utiliser les nano matériaux comme catalyseur en micro et nano combustion. Par exemple, la taille nanométrique des matériaux nanostructurés permet à la chaleur de se dissiper rapidement, ordres de grandeur plus rapide que les micro structures créées avec des matériaux conventionnels[162]. Ils peuvent donc être utilisés pour le stockage de l'énergie, la gestion thermique, ou d'autres applications liées à l'énergie. De même, le transfert de chaleur et de masse en combustion est limité par le temps de réaction, comparativement au temps de diffusion. Ce phénomène conduit à de nouvelles formes de stockage et de transfert d'énergie[160]. Cependant, avec la technologie actuelle, ces dispositifs demeurent très coûteux, nécessite un temps de fabrication important, et il est très discutable que la production de masse ne permette de réduire les coûts à un niveau tel qu'ils deviennent des alternatives viables.

7.5 Conclusion

Il était question dans ce chapitre de calculer les dimensions optimales d'un réacteur permettant de statuer sur la faisabilité de la nano combustion. La démarche a été d'exprimer l'épaisseur d'une flamme en fonction des dimensions d'entrée des réactifs (gap), par rapport aux paramètres de combustion dans un réacteur. On a montré que la nano combustion est possible à travers les fondamentaux théoriques, ce qui représente une plus-value indéniable. Le modèle de réacteur plug flow a été utilisé, alimenté par un pré mélange méthane/air. Le modèle simulé est une équation de degré quatre, on pourra retenir des résultats obtenues que, la plus petite dimension pour un tel réacteur est de 100 μm permettant d'obtenir une flamme de 50 μm d'épaisseur. Bien qu'une telle dimension de flamme soit très petite (dix fois inférieure à l'épaisseur d'une flamme 0,42mm), ceci pourrait être comparé expérimentalement.

La combustion a été simulée dans différents réacteurs avec les dimensions préalablement obtenues par optimisation, cependant le plus petit gap de réacteur à travers lequel une flamme a pu être stabilisée était de 500 μm . Ce qui permet de conclure qu'au stade actuel de la recherche et de nos travaux, la nano combustion n'a pas pu être simulée. Cependant l'utilisation d'autres modèles de cinétique chimique pourraient améliorer considérablement la réduction des dimensions du micro réacteur utilisé comme prototype. En outre la confrontation des résultats de simulation et ceux expérimentaux permettrait d'ajuster les variables pour l'obtention d'un modèle approprié. D'autres études numériques et expérimentales doivent donc être menées pour rendre possible la nano combustion.

Chapitre 8 - Conclusion Générale

Près de deux cents publications ont été produites depuis l'année 1999 à nos jours ayant trait à la micro combustion. Toutes ces publications abordent chacune un axe de recherche précis qui a permis de voir la réalisation des prototypes de micro réacteurs, les uns plus performants que les autres. L'intégration de ces prototypes dans des dispositifs pratiques réels se fait de plus en plus, particulièrement dans le pilotage des avions miniaturisés, les micros satellites, les micros moteurs et dans la micro production d'électricité centralisée. Il faudra probablement attendre encore quelques années pour leur intégration dans des dispositifs électroniques usuelles. Les problèmes solutionnés, ayant longtemps constitué un frein à la mise en œuvre de dispositifs de MPG sont, ceux de la réduction des dimensions d'entrée des réactifs, du choix d'une cinétique chimique appropriée, la gestion de l'énergie générée dans le micro réacteur, la conversion et l'utilisation de l'énergie, la recirculation des gaz, les pertes de chaleur aux parois et aussi la destruction des radicaux libres sur les parois du micro réacteur.

8.1 Récapitulatif et synthèse de travaux

Dans le cadre de cette thèse le problème posé était dans un premier temps, celui de l'analyse de la production des polluants de ces micros dispositifs conçus pour remplacer les batteries dans leur utilisation quotidienne, tant il est vrai que les actions des polluants des macros dispositifs sur l'environnement et sur la santé des humains est néfaste. Dans un deuxième temps, il était question de se prononcer sur la possibilité ou non de la nano combustion. Ces deux objectifs ont induit un objectif préalable, celui de produire tout d'abord une flamme qui permettrait d'élaborer toute étude.

Les travaux effectués ont permis de comprendre l'importance de la cinétique chimique dans les micros dispositifs, l'ordre de grandeur de la température, la position et la structure des flammes générées. La température et la structure d'une flamme sont des paramètres importants pour caractériser un processus de combustion; de plus dans le contexte de la micro combustion la maîtrise de la température de la flamme et sa localisation permettent le choix judicieux du matériau des parois du micro réacteur. Une étude numérique d'une flamme pré mélangée de méthane air a été effectuée pour analyser et comparer l'impact de la cinétique chimique à une équation globale suivant les modèles de Mantel, Duterque et Arrhenius sur la structure de la micro flamme, la température du fluide réactif et la température des parois. Il ressort de cette étude que la cinétique chimique à une équation globale impacte sur la forme de la micro flamme. Des flammes de forme convexe, arrondie et allongée ont été obtenues respectivement par les modèles de Mantel et de Duterque tandis que la flamme obtenue par le modèle qualifié d'Ahrrenius présentait un point très chaud illuminé. De même, le modèle de cinétique chimique de Duterque occasionne un allongement de la zone de réaction augmentant le risque d'un blowout avec une épaisseur de flamme avoisinant 0.5 mm, légèrement supérieure à la valeur de l'épaisseur d'une flamme de méthane normale. Comme dans le cas de plusieurs études où une cinétique réduite a été utilisée, la température des différentes flammes obtenues dans le milieu de l'écoulement est surestimée, ce qui était donc attendu; cependant on peut noter dans le cas du modèle de Duterque une température excessive de combustion de l'ordre de 2500 K, ainsi qu'un retard à l'ignition du mélange provoquant une accumulation du mélange réactif froid à l'entrée du réacteur. Aucune particularité n'a été remarquée sur le profil de température des parois, cependant il ressort que la cinétique chimique joue un rôle

important sur la détermination de la température initiale à choisir pour la simulation des micros flammes.

L'utilisation d'une cinétique chimique à une équation globale est associée à plusieurs simplifications, par conséquent les résultats présentés doivent être traités comme des tendances, mais surtout pas comme des prédictions précises, quoique leur analyse puisse permettre une compréhension maîtrisée du phénomène de combustion dans les micros chambres de combustion. La prédiction de la flamme obtenue avec le modèle de Mantel est cohérente avec les résultats présents dans la littérature; ce modèle peut être utilisé aisément pour un premier calcul.

L'analyse de la production des polluants produits par un micro réacteur exigeait au préalable d'utiliser un modèle de cinétique chimique capable de ressortir la contribution des produits de combustion ayant une forte probabilité d'apparition. Pour cela le modèle de Jones et Lindstedt avec une cinétique chimique simplifiée à quatre équations globales a été utilisé. La flamme simulée, dans les conditions pauvres ($0.7 < \phi < 0.9$), est de forme convexe avec une zone de réaction élargie donnant lieu à une température de combustion de l'ordre de 2036 K, 2014 K et 1846 K selon la richesse du mélange. La température des fumées à la sortie du réacteur est restée quasiment constante et élevée de l'ordre respectivement de 1850 K, 1800 K et 1550 K. Il est à noter qu'à notre connaissance le modèle de cinétique chimique réduit à quatre équations n'avait jamais été utilisé pour la simulation des micros flammes; seuls les modèles simplifiés à une équation l'ont abondamment été. La flamme obtenue est dans un certain sens similaire à celle produite lorsqu'il est utilisé des modèle de cinétique chimique détaillée, en outre les températures obtenues ne sont pas du tout du même ordre que celles obtenues par des modèles de cinétique à une équation globale qui est

caractérisée par des températures élevées supérieures même à la température adiabatique dans ces conditions comme l'ont obtenu Vlachos et *al.*.

Les polluants étudiés ont été le dioxyde de carbone (CO_2), le monoxyde de carbone (CO), et le monoxyde d'azote (NO) en faisant varier le ratio équivalent. Quant aux imbrûlés de combustible, leur présence ne peut se justifier au vu de l'ordre de grandeur des températures de produits de combustion à la sortie du micro réacteur, tout au moins dans les conditions choisies. Le dioxyde de carbone est présent dans les fumées en quantité inférieure au seuil exigé pour un air respirable. Quant au monoxyde de carbone caractéristique d'une combustion incomplète, il ne semble pas présent dans les fumées probablement à cause des températures élevées à la sortie du réacteur. Cependant, sa présence peut se justifier par l'action des parois du micro réacteur où peuvent se produire des micros extinctions partielles, qui ne sont pas visibles sur les figures mais qui existent. L'étude du NO thermique a été privilégiée, dans la mesure où les températures existantes dans le micro réacteur sont élevées ce qui permet de déduire que la présence de NO_2 du combustible et du prompt NO ne se justifie pas. Les quantités du NO thermique obtenues sont de l'ordre maximal de 0.8 ppm dans les trois conditions simulées, ce qui est largement inférieur aux quantités produites par les installations homologues macroscopiques (3000-4000 ppm) et donc potentiellement moins dangereux. Cependant, il faut noter que pour un air respirable la concentration de NO acceptable est de 1 ppm en milieu fermé.

L'étude effectuée visait à prédire la quantité de production des polluants et le type de polluants. Une étude expérimentale complémentaire confirmera les résultats obtenus, afin de les comparer aux seuils tolérables par les humains tel que exigés par la législation sur la santé et la sécurité.

A la suite de l'analyse des polluants produits par des micros réacteurs, une étude d'optimisation des dimensions d'entrée des réactifs du micro réacteur a été suivie d'une production de flamme. Pour y arriver, l'épaisseur de la flamme ou zone de réaction a été exprimée en fonction du gap d'entrée des réactifs H . Cette démarche a permis d'obtenir trois approches analytiques; la première est une équation mathématique du degré quatre liant à la fois l'épaisseur de la flamme δ_r , le gap d'entrée H , le nombre de Nusselt Nu , la conductivité thermique à la fois du fluide et des parois, l'épaisseur des parois et des différentes températures régnant dans le micro réacteur à savoir, la température des flammes T_f , la température d'ignition, T_i et la température des gaz froids T_0 . Le résultat obtenu a donné un minimum du gap d'entrée H de l'ordre de $100\mu\text{m}$ pour une épaisseur de flamme δ_r minimal de $0,05\text{mm}$, l'épaisseur maximale δ_r obtenue par rapport à l'intervalle d'étude limité à $600\mu\text{m}$ fut de $4,5\text{ mm}$. La deuxième quant à elle, est une simple expression liant le nombre de Reynolds et le nombre de Lewis, elle nous permet quant à elle de vérifier à chaque fois que nos hypothèses sont plausibles comparativement aux résultats obtenus à partir de la première équation, il en est de même pour la troisième. Cette dernière est le rapport de la longueur du micro réacteur et le produit des nombres adimensionnels de Damkholer, Schmidt et Lewis.

Par rapport à l'écart (gap) obtenu par les simulations qui ont été effectuées il a été simulé la micro flamme dans le réacteur modèle tubulaire, la dimension minimale du gap H d'entrée des réactifs obtenue est alors de $450\mu\text{m}$ donnant une température maximale de 1620 K ; lorsqu'on le baisse à $400\mu\text{m}$, on observe des extinctions répétitives tout au long du micro réacteur, et à une valeur de H inférieure il n'ya plus de formation d'une flamme. Cependant, si la simulation ne corrobore pas les résultats de la modélisation, il est

important que d'autres pistes puissent être explorées, comme la variation des conductivités thermiques à la fois du fluide et des parois, la variation de l'épaisseur des parois ou la modélisation géométrique, pour ne pas perdre de vue le résultat de 150 μm de gap obtenu par Zamakikov. Si ces différents paramètres sont analysés et éprouvés la nano combustion sera réalité sous forme de prototypes dans un avenir pas trop lointain. Cet espoir se justifie aussi par les possibilités apportées par les nano matériaux dont l'application à divers domaines a amélioré considérablement les possibilités et ouvert des voies de recherche.

Les objectifs fixés ont tous été atteints par les atteintes aux questions posées par la problématique de cette étude. Une flamme a été simulée, les polluants produits ont été analysés aussi bien quantitativement que qualitativement et la possibilité de la faisabilité de la nano combustion a été élucidé. Cependant l'humilité impose de reconnaître que la problématique de cette thèse n'est pas épuisée. A côté des flammes pré mélangées de méthane qui ont été étudiées, d'innombrables mélanges combustibles-comburants peuvent être exploités et étendus de même que les flammes de diffusion.

8.2 Perspectives et recommandations

L'étude de la micro combustion est récente, si Borghi déclarait en 2008 que les problèmes en macro combustion sont tous connus et aujourd'hui quasiment tous résolus, tel n'est pas le cas en micro combustion où la recherche peut être approfondie. Dans le cadre de cette thèse la simulation numérique a été choisie pour résoudre les problèmes abordés car le choix d'une étude expérimentale aurait été couteux. Sur un plan pratique l'étude de l'effet de la cinétique chimique sur la stabilité de la flamme, permettrait un dimensionnement approprié du compresseur d'alimentation du mélange réactif, d'une part et d'autre part un choix pertinent des parois du micro réacteur dans la mesure où les

températures atteintes dans ce cas sont maximales. En outre, l'étude des polluants générés par un dispositif MPG apporte l'assurance aux utilisateurs tout comme aux concepteurs que son utilisation est sécuritaire. Enfin, la possibilité de la nano combustion permet une optimisation plus importante de la micro production d'électricité. On pourrait alors produire une énergie importante avec un dispositif extrêmement petit.

Les résultats obtenus devraient être confrontés à ceux expérimentaux pour prendre tout leur sens. Les écarts possibles seraient dans le sens des températures d'opération moins importantes que celles obtenues, car les cinétiques chimiques utilisées sont connues pour donner des résultats surestimés. D'autre part les polluants énumérés peuvent s'avérer moindre ou plus important et la dimension de 100 μm pour la dimension d'entrée des réactifs probablement trop petite.

Tout au long de cette recherche, plusieurs problèmes sont apparus qui pourraient faire l'objet de sujets de recherche. Quelques suggestions, non-exhaustives ont fait surface :

- 1- Les flammes de diffusion en micro combustion ont un comportement différent lorsque les dimensions d'entrée des réactifs sont diminuées. Pour qu'elles existent, elles ont besoin d'une turbulence nécessaire au mélange du comburant et du carburant. Il serait intéressant d'étudier l'effet de la cinétique chimique sur la stabilité de la micro flamme de diffusion, augmenté des phénomènes de dilution de l'azote sur son comportement.
- 2- Les micros réacteurs dans leur ensemble sont de dimensions 3, cependant pour une économie de temps de calcul, dans toutes les études abordées dans la littérature les micros flammes étudiées l'ont été en 1D et en 2D, s'il a été démontré que dans ces deux dimensions leur comportement est similaire, on peut se poser la question de

savoir si ce serait le cas en 3D, une étude comparative de la structure de la micro flamme en 1D, 2D et en 3D dimension permettrait de mieux comprendre leur comportement et confirmer les hypothèses différentes.

- 3- La modélisation géométrique en micro combustion est essentielle dans la conception des micros réacteurs et ce suivant leur application; il ressort des études qu'elle constituerait une piste essentielle pour la conception d'un nano réacteur, car les formes géométriques originales peuvent améliorer le mélange des réactifs et contribuer à l'ignition de la micro flamme.

8.3 Production scientifique

8.3.1 Articles de Journaux

Cette thèse a fait l'objet de soumission de deux articles de journaux à comité de lecture, placés en Annexes sous leur forme définitive, tel que soumis et enregistré par les dits journaux.

- NUMERICAL SIMULATION OF PREMIXED METHANE/AIR MICRO FLAME: EFFECTS OF SIMPLIFIED ONE STEP CHEMICAL KINETIC MECHANISMS ON THE FLAME STABILITY, répond au premier objectif de la

thèse qui était celui de simuler une micro flamme. (Soumis au journal Applied Thermal Engineering, 28/02/2014)

- NUMERICAL EVALUATION OF POLLUTANTS EMISSIONS IN PREMIXED METHANE/AIR MICRO FLAME, quant à lui répond à au deuxième objectif de la thèse qui visait à évaluer l'éventuelle nocivité des MPG sur l'environnement et la santé des humains.(Soumis au journal Combustion and Flame, 08/04/2014).

8.3.2 *Conférences Internationales*

De même, les résultats des travaux furent présentés à quatre conférences de renom;

- **2014;** IMPACT OF SINGLE KINETIC MECHANISM MODELS ON MICRO FLAME.MRS Spring Meeting & Exhibit, Poster, San Francisco, USA.
- **2013;** COMPUTATIONAL MODELLING OF PREMIXED METHANE/OXYGEN FLAME IN A MICROREACTOR WITH COMSOL 4.2A SOFTWARE; 9ème Congrès Européen de Genie Chimique, Amsterdam Pays Bas, Poster.
- **2013;** :EFFECT OF CHEMICAL KINETICS AND MOLECULAR DIFFUSION IN A METHANE-AIR PREMIXED FLAME ON MICROCOMBUSTION. International conference of Applied Energy, Pretoria, Afrique du Sud, Communication libre.
- **2012;** CONTRAINTES DE LA MODÉLISATION EN MICRO ET NANO COMBUSTION, 80 ème Congrès de l'Acfas, Montréal, Canada, Communication libre.

8.3.3 Distinction et Bourses

En 2012, l'auteur a été lauréat du tout premier concours ***présentation de ma thèse en 180 secondes***, organisé à l'UQTR. Cette distinction a donné droit de représenter l'UQTR au tout premier concours provincial de « ma thèse en 180 secondes » au Palais de congrès de Montréal. Cette présentation a donné lieu à la diffusion sur Youtube, par le comité d'organisation, d'une vidéo visionnée près de 200 fois.

Pendant la durée des études doctorales, l'auteur a reçu plusieurs bourses, tant pour son travail scolaire que pour la diffusion des résultats de ses travaux de recherche.

- **2014** : Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers
- **2014** : Bourse du décanat aux études supérieures de l'UQTR, Aide à la diffusion
- **2013** : Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers
- **2013** : Bourse du décanat aux études supérieures de l'UQTR, Aide à la diffusion
- **2011** : Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers.

Bibliographie

- [1] A. C. Fernandez-Pello, "Micropower generation using combustion: Issues and approaches," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 29, pp. 883-899, 2002.
- [2] S. K. Chou, W. M. Yang, K. J. Chua, J. Li, and K. L. Zhang, "Development of micro power generators - A review," *Applied Energy*, vol. 88, pp. 1-16, 2011.
- [3] D. C. Walther and J. Ahn, "Advances and challenges in the development of power-generation systems at small scales," *Progress in Energy and Combustion Science*, 2011.
- [4] S. Y. Jejurkar and D. P. Mishra, "A review of recent patents on micro-combustion and applications," *Recent Patents on Engineering*, vol. 3, pp. 194-209, 2009.
- [5] W. X. Ge and P. Cong, "Trends and frontiers of MEMS," *Nami Jishu yu Jingmi Gongcheng/Nanotechnology and Precision Engineering*, vol. 5, pp. 182-189, 2007.
- [6] A. Epstein, S. Senturia, O. Al-Midani, G. Anathasuresh, A. Ayon, K. Breuer, *et al.*, "Micro-Heat Engines, Gas Turbines, and Rocket Engines-The MIT Microengine Project," *AIAA paper*, vol. 97, p. 1773, 1997.
- [7] V. Zamashchikov and E. Tikhomolov, "Sub-critical stable hydrogen-air premixed laminar flames in micro gaps," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 36, pp. 8583-8594, 2011.
- [8] L. Denat, V. Sabel'nikov, J. Guidez, and C. ONERA, "LARGE EDDY SIMULATION OF HYDROCARBON COMBUSTION IN A MINIATURIZED REVERSE FLOW CHAMBER," 2008.
- [9] J. Vican, B. F. Gajdeczko, F. L. Dryer, D. L. Milius, I. A. Aksay, and R. A. Yetter, "Development of a microreactor as a thermal source for microelectromechanical systems power generation," 2002, pp. 909-916.
- [10] C. Cadou, T. Leach, and M. U. C. P. D. O. A. ENGINEERING, "Micro-Combustion for Nano and Pico Satellite Propulsion Systems," 2003.
- [11] W. M. Yang, S. K. Chou, C. Shu, H. Xue, Z. W. Li, D. T. Li, *et al.*, "Microscale combustion research for application to micro thermophotovoltaic systems," *Energy Conversion and Management*, vol. 44, pp. 2625-2634, 2003.
- [12] A. H. Epstein, "Millimeter-scale, micro-electro-mechanical systems gas turbine engines," *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, vol. 126, pp. 205-226, 2004.
- [13] C. M. Miesse, R. I. Masel, C. D. Jensen, M. A. Shannon, and M. Short, "Submillimeter-scale combustion," *AIChE Journal*, vol. 50, pp. 3206-3214, 2004.

- [14] D. G. Norton and D. G. Vlachos, "A CFD study of propane/air microflame stability," *Combustion and Flame*, vol. 138, pp. 97-107, 2004.
- [15] T. T. Leach, C. P. Cadou, and G. S. Jackson, "Effect of structural conduction and heat loss on combustion in micro-channels," *Combustion Theory and Modelling*, vol. 10, pp. 85-103, 2006.
- [16] P. Lee, S. Garimella, and D. Liu, "Investigation of heat transfer in rectangular microchannels," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 48, pp. 1688-1704, 2005.
- [17] A. D. Armijo, S. Prakash, M. Shannon, C. Miesse, and R. I. Masel, "Flame structure in microcombustion," Cincinnati, OH, 2005, p. 10286.
- [18] J. Hua, M. Wu, and K. Kumar, "Numerical simulation of the combustion of hydrogen-air mixture in micro-scaled chambers. Part I: Fundamental study," *Chemical Engineering Science*, vol. 60, pp. 3497-3506, 2005.
- [19] J. Hua, M. Wu, and K. Kumar, "Numerical simulation of the combustion of hydrogen-air mixture in micro-scaled chambers Part II: CFD analysis for a micro-combustor," *Chemical Engineering Science*, vol. 60, pp. 3507-3515, 2005.
- [20] Z. W. Li, S. K. Chou, C. Shu, and W. M. Yang, "Entropy generation during microcombustion," *Journal of Applied Physics*, vol. 97, pp. 1-8, 2005.
- [21] N. Kaisare and D. Vlachos, "Extending the region of stable homogeneous micro-combustion through forced unsteady operation," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, pp. 3293-3300, 2007.
- [22] N. S. Kaisare and D. G. Vlachos, "Optimal reactor dimensions for homogeneous combustion in small channels," *Catalysis Today*, vol. 120, pp. 96-106, 2007.
- [23] J. A. Federici and D. G. Vlachos, "A computational fluid dynamics study of propane/air microflame stability in a heat recirculation reactor," *Combustion and Flame*, vol. 153, pp. 258-269, 2008.
- [24] S. Prakash, R. Akberov, D. Agonafer, A. D. Armijo, and M. A. Shannon, "Influence of Boundary Conditions on Sub-Millimeter Combustion," *Energy & Fuels*, vol. 23, pp. 3549-3557, 2009.
- [25] S. Y. Jejurkar, D. P. Mishra, and C. Laboratory, "Thermal Performance Characteristics of a Microcombustor for Heating and Propulsion (Abbreviated Title: Performance of Annular Microcombustor)," *Applied Thermal Engineering*, vol. In Press, Accepted Manuscript, 2010.
- [26] A. Fan, K. Maruta, H. Nakamura, and W. Liu, "Experimental investigation of flame pattern transitions in a heated radial micro-channel," *Applied Thermal Engineering*, 2012.
- [27] C. Miesse, R. I. Masel, M. Short, and M. A. Shannon, "Diffusion flame instabilities in a 0.75 mm non-premixed microburner," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, pp. 2499-2507, 2005.

- [28] S. Prakash, A. Armijo, R. Masel, and M. Shannon, "Characterizing nonpremixed sub-millimeter combustion," 2006, pp. 17–20.
- [29] S. Prakash, A. D. Armijo, R. I. Masel, and M. A. Shannon, "Flame dynamics and structure within sub-millimeter combustors," *AIChE Journal*, vol. 53, pp. 1568–1577, 2007.
- [30] S. Prakash, R. I. Masel, A. D. Armijo, and M. A. Shannon, "Unsteady flames in microcombustion," 2006.
- [31] K. Maruta, T. Kataoka, N. I. Kim, S. Minaev, and R. Fursenko, "Characteristics of combustion in a narrow channel with a temperature gradient," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, pp. 2429–2436, 2005.
- [32] J. Li and B. Zhong, "Experimental investigation on heat loss and combustion in methane/oxygen micro-tube combustor," *Applied Thermal Engineering*, vol. 28, pp. 707–716, 2008.
- [33] S. Jejurkar and D. Mishra, "Effects of combustor geometry on hydrogen–air premixed flame combustion in an annular microcombustor," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part G: Journal of Aerospace Engineering*, vol. 225, pp. 1310–1321, 2011.
- [34] C. M. Spadaccini and I. A. Waitz, "Micro-Combustion," in *Comprehensive Microsystems*, G. Yogesh, T. Osamu, and Z. Hans, Eds., ed Oxford: Elsevier, 2008, pp. 475–497.
- [35] I. Lee and A. R. L. A. MD, "Small Scale Burner Review," 2009.
- [36] V. Zamashchikov, "Experimental investigation of gas combustion regularities in narrow tubes," *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, vol. 32, pp. 36–40, 1996.
- [37] V. V. Zamashchikov, "Experimental investigation of gas combustion regimes in narrow tubes," *Combustion and Flame*, vol. 108, pp. 357–359, 1997.
- [38] D. H. Lee and S. Kwon, "Heat transfer and quenching analysis of combustion in a micro combustion vessel," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 12, p. 670, 2002.
- [39] V. Seshadri and N. S. Kaisare, "Ignition strategies for fuel mixtures in catalytic microburners," *Combustion Theory and Modelling*, vol. 14, pp. 23–40, 2010.
- [40] V. Seshadri and N. S. Kaisare, "Simulation of hydrogen and hydrogen-assisted propane ignition in pt catalyzed microchannel," *Combustion and Flame*, vol. 157, pp. 2051–2062, 2010.
- [41] J. A. Federici, E. D. Wetzel, B. R. Geil, and D. G. Vlachos, "Single channel and heat recirculation catalytic microburners: An experimental and computational fluid dynamics study," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 32, pp. 3011–3018, 2009.
- [42] D. G. Vlachos, "Microreactor Engineering: Processes, Detailed Design and Modeling," *Microfabricated Power Generation Devices*, pp. 179–198, 2009.

- [43] K. Maruta, K. Takeda, L. Sitzki, K. Borer, P. D. Ronney, S. Wussow, *et al.*, "Catalytic combustion in microchannel for MEMS power generation," 2001, pp. 24-27.
- [44] C. Jensen, R. Masel, G. Moore, and M. Shannon, "Burner Designs for Microcombustion," *Combust. Sci. Technol.*, 2003.
- [45] V. Zhamashchikov, "Special features of combustion of propane-air and hydrogen-air mixtures in a narrow tube," *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, vol. 33, pp. 640-646, 1997.
- [46] Z. W. Li, S. K. Chou, C. Shu, H. Xue, and W. M. Yang, "Characteristics of premixed flame in microcombustors with different diameters," *Applied Thermal Engineering*, vol. 25, pp. 271-281, 2005.
- [47] K. T. Kim, D. H. Lee, and S. Kwon, "Effects of thermal and chemical surface-flame interaction on flame quenching," *Combustion and Flame*, vol. 146, pp. 19-28, 2006.
- [48] K. H. Lee and O. C. Kwon, "A numerical study on structure of premixed methane-air microflames for micropower generation," *Chemical Engineering Science*, vol. 62, pp. 3710-3719, 2007.
- [49] J. Li, S. K. Chou, G. Huang, W. M. Yang, and Z. W. Li, "Study on premixed combustion in cylindrical micro combustors: Transient flame behavior and wall heat flux," *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 33, pp. 764-773, 2009.
- [50] J. Li, S. K. Chou, W. M. Yang, and Z. W. Li, "A numerical study on premixed micro-combustion of CH₄-air mixture: Effects of combustor size, geometry and boundary conditions on flame temperature," *Chemical Engineering Journal*, vol. 150, pp. 213-222, 2009.
- [51] S. Y. Jejurkar and D. P. Mishra, "Numerical characterization of a premixed flame based annular microcombustor," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, pp. 9755-9766, 2010.
- [52] V. N. Kurdyumov and M. Matalon, "Analysis of an idealized heat-recirculating microcombustor," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. In Press, Corrected Proof, 2010.
- [53] Y. Gan, J. Cheng, and Z. Yang, "Experimental study on the small-scale diffusion flame of ethanol and the wall temperature field," *Heat Transfer—Asian Research*, vol. 39, pp. 87-96, 2010.
- [54] P. L. Woodfield, K. Nakabe, and K. Suzuki, "Numerical study for enhancement of laminar flow mixing using multiple confined jets in a micro-can combustor," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 46, pp. 2655-2663, 2003.
- [55] C. Dumand, "Mélange et combustion dans les petits volumes: application au micro systèmes énergétiques," 2005.
- [56] V. Hessel, H. Löwe, and F. Schönfeld, "Micromixers - A review on passive and active mixing principles," *Chemical Engineering Science*, vol. 60, pp. 2479-2501, 2005.

- [57] S. Lahraichi, V. Sabel'nikov, and P. Bruel, "Etude expérimentale et numérique du mélange dans le canal de prémélange et la chambre de combustion d'une micro-turbine à gaz," *18ème Congrès Français de Mécanique (Grenoble 2007)*, 2007.
- [58] D. G. Norton and D. G. Vlachos, "Combustion characteristics and flame stability at the microscale: a CFD study of premixed methane/air mixtures," *Chemical Engineering Science*, vol. 58, pp. 4871-4882, 2003.
- [59] A. IRANI RAHAGHI, M. SAEIDI, M. SAEIDI, and M. SHAFIEI, "TWO-DIMENSIONAL NUMERICAL INVESTIGATION OF A MICRO COMBUSTOR," *SCIENITLA IRANICA*, 2010.
- [60] S. R. Shabanian, M. Rahimi, A. Khoshhal, and A. A. Alsairafi, "CFD Study on Hydrogen-Air Premixed Combustion in a Micro Scale Chamber," *Iran. J. Chem. Chem. Eng. Vol*, vol. 29, 2010.
- [61] Z. Li, S. Chou, C. Shu, and W. Yang, "Effects of step height on wall temperature of a microcombustor," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 15, p. 207, 2005.
- [62] N. S. Kaisare and D. G. Vlachos, "A review on microcombustion: Fundamentals, devices and applications," *Progress in Energy and Combustion Science*, 2012.
- [63] Y. Zhang, J. Zhou, W. Yang, M. Liu, and K. F. Cen, "Study of the Experiment on Thermoelectric-microcombustors," in *Zhongguo Dianji Gongcheng Xuebao(Proceedings of the Chinese Society of Electrical Engineering)*, 2006, pp. 114-118.
- [64] L. Sitzki, K. Borer, E. Schuster, P. D. Ronney, and S. Wussow, "Combustion in microscale heat-recirculating burners," 2001, pp. 11-14.
- [65] L. C. Chia and B. Feng, "The development of a micropower (micro-thermophotovoltaic) device," *Journal of Power Sources*, vol. 165, pp. 455-480, 2007.
- [66] W. Yang, S. Chou, C. Shu, H. Xue, Z. Li, D. Li, *et al.*, "Microscale combustion research for application to micro thermophotovoltaic systems," *Energy Conversion and Management*, vol. 44, pp. 2625-2634, 2003.
- [67] J. Pan, J. Huang, D. Li, W. Yang, W. Tang, and H. Xue, "Effects of major parameters on micro-combustion for thermophotovoltaic energy conversion," *Applied Thermal Engineering*, vol. 27, pp. 1089-1095, 2007.
- [68] J. Park, J. So, H. Moon, and O. Kwon, "Measured and predicted performance of a micro-thermophotovoltaic device with a heat-recirculating micro-emitter," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 54, pp. 1046-1054, 2011.
- [69] H. Zhu and G. Jackson, "Transient modeling for assessing catalytic combustor performance in small gas turbine applications," *ASME paper*, 2001.
- [70] C. Spadaccini, A. Mehra, J. Lee, X. Zhang, S. Lukachko, and I. Waitz, "High power density silicon combustion systems for micro gas turbine engines," *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power(Transactions of the ASME)*, vol. 125, pp. 709-719, 2003.

- [71] F. Bozza, M. C. Cameretti, and R. Tuccillo, "Adapting the micro-gas turbine operation to variable thermal and electrical requirements," *Journal of Engineering for Gas Turbines and Power*, vol. 127, pp. 514-524, 2005.
- [72] X. Shan, Z. Wang, Y. Jin, M. Wu, J. Hua, C. Wong, *et al.*, "Studies on a micro combustor for gas turbine engines," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 15, p. S215, 2005.
- [73] M. Wu, J. Hua, and K. Kumar, "An improved micro-combustor design for micro gas turbine engine and numerical analysis," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 15, p. 1817, 2005.
- [74] W. ZHANG and Z. FENG, "DESIGN AND STUDY OF ANNULAR COMBUSTOR FOR MICRO TURBINE [J]," *Proceedings of the Csee*, vol. 5, 2005.
- [75] C. Gonzalez, K. Wong, and S. Armfield, "A computational study of the influence of the injection characteristics on micro-turbine combustion," in *16th Australasian Fluid Mechanics Conference (AFMC)*, 2007, pp. 1148-1153.
- [76] T. Verstraete, Z. Alsalihi, and R. Van den Braembussche, "Numerical study of the heat transfer in micro gas turbines," *Journal of turbomachinery*, vol. 129, p. 835, 2007.
- [77] C. A. Gonzalez Toro, K. Wong, and S. Armfield, "Computational study of a micro-turbine engine combustor using large eddy simulation and Reynolds averaged turbulence models," *ANZIAM Journal*, vol. 49, pp. C407--C422, 2008.
- [78] Z. Zeng, Z. Wang, and G. Song, "Numerical Study of the Effects of Main Parameters on Micro-combustion for Micro-gas Turbine Engine," 2010, pp. 1-4.
- [79] L. G. Fr  chette, C. Lee, S. Arslan, and Y. C. Liu, "Design of a microfabricated Rankine cycle steam turbine for power generation," *Proc. ASME Int. Mech. Eng. Congr. Micro-Electromech. Syst. Division*, vol. 5, pp. 335-344, 2003.
- [80] K. Zhang, S. Chou, and S. S. Ang, "Development of a solid propellant microthruster with chamber and nozzle etched on a wafer surface," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 14, p. 785, 2004.
- [81] A. Chaalane, C. Rossi, and D. Est  ve, "MEMS-based solid propellant micro -rocket with micro-igniter on thin membrane for next generation of low-cost small space and aeronautic engines," 2006, pp. 340-343.
- [82] A. Boicea, G. Chicco, and P. Mancarella, "Optimal operation of a microturbine cluster with partial-load efficiency and emission characterization," 2009, pp. 1-8.
- [83] L. JUN, "Combustion and Energy Transport in the Micro-scale," 2009.
- [84] J. Pan, W. Yang, A. Tang, S. Chou, L. Duan, X. Li, *et al.*, "Micro combustion in sub-millimeter channels for novel modular thermophotovoltaic power generators," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 20, p. 125021, 2010.
- [85] J.-f. Qian and C.-j. Yang, "Analysis of the generating ability of the thermoelectric conversion device," *Chinese Journal of Power Sources*, vol. 29, p. 459, 2005.

- [86] <https://www.google.ca/search?q=micros+turbines+%C3%A0+gaz&source>, "Images des turbines à gaz," <https://www.google.ca/search?q=micros+turbines+%C3%A0+gaz&source>, 2014.
- [87] A. H. Epstein and S. D. Senturia, "Macro power from micro machinery," *Science*, vol. 276, p. 1211, 1997.
- [88] L. Gasnot, "STRUCTURES DE FLAMMES PLATES LAMINAIRES ET PREMELANGEES: ANALYSES PAR TECHNIQUES DE PRELEVEMENT," *SEPTIEME ECOLE DE COMBUSTION, Mont Saint Odile - 24 au 30 Mai*, 2000.
- [89] T. Poinso and D. Veynante, *Theoretical and numerical combustion*: RT Edwards, Inc., 2005.
- [90] D. Veynante, *Flamme de diffusion laminaire*: Ed. Techniques Ingénieur, 1999.
- [91] N. Samira, "Etude Numérique de la combustion des gaz dans un four de cimenterie," *Mémoire de Magistère, Université Hadj-Lakhdar Batna*, p. 94, 2006.
- [92] K. K. Kuo, *Principles of combustion*: Wiley New York et al., 1986.
- [93] C. K. Westbrook and F. L. Dryer, "Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames," *Combustion Science and Technology*, vol. 27, pp. 31-43, 1981.
- [94] D. Hautman, F. Dryer, K. Schug, and I. Glassman, "A multiple-step overall kinetic mechanism for the oxidation of hydrocarbons," 1981.
- [95] A. Mameri, "Etude numérique de la combustion turbulente du prémélange pauvre méthane/air enrichi à l'hydrogène," 2009.
- [96] G. Dixon-Lewis, "Structure of laminar flames," 1991, pp. 305-324.
- [97] R. Borghi and M. Champion, *Modélisation et théorie des flammes*: Editions Technip, 2000.
- [98] R. Borghi and M. Destriau, *La combustion et les flammes*: Editions Technip, 1995.
- [99] S. Raimondeau, D. Norton, D. G. Vlachos, and R. I. Masel, "Modeling of high-temperature microburners," 2002, pp. 901-907.
- [100] S. Karagiannidis, J. Mantzaras, G. Jackson, and K. Boulouchos, "Hetero-/homogeneous combustion and stability maps in methane-fueled catalytic microreactors," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 31, pp. 3309-3317, 2007.
- [101] M. Cathonnet, "Advances and challenges in the chemical kinetics of combustion," in *Proceedings of the European Combustion Meeting*, 2003, pp. 25-28.
- [102] C. Multiphysics, "4.2 a user guide," *Stockholm, Sweden*, 2008.
- [103] F. A. Williams, *Combustion Theory: the fundamental theory of chemical reacting flow systems*: Addison-Wesley, 1965.

- [104] S. Deshmukh and D. Vlachos, "A reduced mechanism for methane and one-step rate expressions for fuel-lean catalytic combustion of small alkanes on noble metals," *Combustion and Flame*, vol. 149, pp. 366-383, 2007.
- [105] A. Gutkowski, "Numerical Analysis of Effect of Ignition Methods on Flame Behavior During Passing Through a Sudden Contraction Near the Quenching Conditions," *Applied Thermal Engineering*, 2013.
- [106] N. I. Kim and K. Maruta, "A numerical study on propagation of premixed flames in small tubes," *Combustion and flame*, vol. 146, pp. 283-301, 2006.
- [107] J. Li, S. Chou, W. Yang, and Z. Li, "A numerical study on premixed micro-combustion of CH_4 -air mixture: Effects of combustor size, geometry and boundary conditions on flame temperature," *Chemical Engineering Journal*, vol. 150, pp. 213-222, 2009.
- [108] C. K. Westbrook and F. L. Dryer, "Chemical kinetic modeling of hydrocarbon combustion," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 10, pp. 1-57, 1984.
- [109] N. Peters and B. Rogg, *Reduced kinetic mechanisms for applications in combustion systems*: Springer, 1993.
- [110] J. DUTERQUE, R. BORGHI, and H. TICHITSKY, "Study of quasi-global schemes for hydrocarbon combustion," *Combustion Science and Technology*, vol. 26, pp. 1-15, 1981.
- [111] N. Peters, "Numerical and asymptotic analysis of systematically reduced reaction schemes for hydrocarbon flames," in *Numerical simulation of combustion phenomena*, ed: Springer, 1985, pp. 90-109.
- [112] W. Jones and R. Lindstedt, "Global reaction schemes for hydrocarbon combustion," *Combustion and Flame*, vol. 73, pp. 233-249, 1988.
- [113] R. B. Edelman and O. Fortune, "A quasi-global chemical kinetic model for the finite rate combustion of hydrocarbon fuels with application to turbulent burning and mixing in hypersonic engines and nozzles," 1969.
- [114] R. Edelman and P. Harsha, "Laminar and turbulent gas dynamics in combustors—current status," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 4, pp. 1-62, 1978.
- [115] C. Hackert, J. Ellzey, and O. Ezekoye, "Effects of thermal boundary conditions on flame shape and quenching in ducts," *Combustion and Flame*, vol. 112, pp. 73-84, 1998.
- [116] E. Fernandez-Tarrazo, A. L. Sánchez, A. Linan, and F. A. Williams, "A simple one-step chemistry model for partially premixed hydrocarbon combustion," *Combustion and Flame*, vol. 147, pp. 32-38, 2006.
- [117] C. D. Hollowell, "Combustion-generated indoor air pollution," 2011.
- [118] G. Bonn, "Health aspects of air pollution with particulate matter, ozone and nitrogen dioxide," 2003.
- [119] J. A. Hoskins, "Health effects due to indoor air pollution," *Indoor and Built Environment*, vol. 12, pp. 427-433, 2003.

- [120] D. G. Vlachos, L. D. Schmidt, and R. Aris, "Products in methane combustion near surfaces," *AIChE journal*, vol. 40, pp. 1018-1025, 1994.
- [121] J. Warnatz, U. Maas, and R. W. Dibble, *Combustion: physical and chemical fundamentals, modeling and simulation, experiments, pollutant formation*: Springer, 2006.
- [122] R. A. Strehlow, *Combustion fundamentals*: McGraw-Hill New York, 1984.
- [123] P. Aghalayam, P. Bui, and D. Vlachos, "THE ROLE OF FLAME-WALL THERMAL INTERACTIONS IN FLAME STABILITY AND POLLUTANT EMISSIONS," *Advances in Chemical Propulsion: Science to Technology*, p. 435, 2010.
- [124] S. Hill and L. Douglas Smoot, "Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 26, pp. 417-458, 2000.
- [125] S. R. Turns, *An introduction to combustion* vol. 499: McGraw-Hill New York, 1996.
- [126] W. Yang and W. Blasiak, "Mathematical modelling of NO emissions from high-temperature air combustion with nitrous oxide mechanism," *Fuel Processing Technology*, vol. 86, pp. 943-957, 2005.
- [127] N. I. Kim, S. Kato, T. Kataoka, T. Yokomori, S. Maruyama, T. Fujimori, *et al.*, "Flame stabilization and emission of small Swiss-roll combustors as heaters," *Combustion and Flame*, vol. 141, pp. 229-240, 2005.
- [128] D. C. Walther and J. Ahn, "Advances and challenges in the development of power-generation systems at small scales," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 37, pp. 583-610, 2011.
- [129] C. H. Marton, G. S. Haldeman, and K. F. Jensen, "Portable Thermoelectric Power Generator Based on a Microfabricated Silicon Combustor with Low Resistance to Flow," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 50, pp. 8468-8475, 2011.
- [130] A. L. Cohen, P. D. Ronney, U. Frodis, L. Sitzki, E. H. Meiburg, and S. Wussow, "Microcombustor and combustion-based thermoelectric microgenerator," ed: Google Patents, 2005.
- [131] J. Peirs, D. Reynaerts, and F. Verplaetsen, "A microturbine for electric power generation," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 113, pp. 86-93, 2004.
- [132] S. Tacchino, "Combustion in microspaces and its applications," Politecnico di Torino, 2013.
- [133] D. Dunn-Rankin, E. M. Leal, and D. C. Walther, "Personal power systems," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 31, pp. 422-465, 2005.
- [134] K. R. Smith, "Fuel combustion, air pollution exposure, and health: the situation in developing countries," *Annual Review of Energy and the Environment*, vol. 18, pp. 529-566, 1993.

- [135] J. A. Miller and C. T. Bowman, "Kinetic modeling of the reduction of nitric oxide in combustion products by isocyanic acid," *International Journal of Chemical Kinetics*, vol. 23, pp. 289-313, 1991.
- [136] J. Hedley, M. Pourkashanian, A. Williams, and L. Yap, "NO_x Formation in Large-Scale Oxy-Fuel Flames," *Combustion Science and Technology*, vol. 108, pp. 311-322, 1995.
- [137] P. Schmitt, T. Poinso, B. Schuermans, and K. Geigle, "Large-eddy simulation and experimental study of heat transfer, nitric oxide emissions and combustion instability in a swirled turbulent high-pressure burner," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 570, pp. 17-46, 2007.
- [138] P. A. Glaude, R. Fournet, R. Bounaceur, and M. Molière, "Adiabatic flame temperature from biofuels and fossil fuels and derived effect on NO_x emissions," *Fuel Processing Technology*, vol. 91, pp. 229-235, 2010.
- [139] H. Tsuji, A. K. Gupta, T. Hasegawa, M. Katsuki, K. Kishimoto, and M. Morita, *High temperature air combustion: from energy conservation to pollution reduction*: CRC press, 2010.
- [140] M. Efinger, J. Mauzey, and V. McDonell, "Characterization and reduction of pollutant emissions from a landfill and digester gas fired microturbine generator," 2005, pp. 381-387.
- [141] A. V. Boicea, G. Chicco, and P. Mancarella, "Optimal operation of a microturbine cluster with partial-load efficiency and emission characterization," 2009.
- [142] M. Nascimento, E. Lora, and M. Rendon, "Experimental Evaluation and Comparison of the Performance and Emissions of a Regenerative Gas Microturbine Using Biodiesel From Various Sources as Fuel," 2007.
- [143] J. Andersen, C. L. Rasmussen, T. Giselsson, and P. Glarborg, "Global combustion mechanisms for use in CFD modeling under oxy-fuel conditions," *Energy & Fuels*, vol. 23, pp. 1379-1389, 2009.
- [144] S. Hill and L. Douglas Smoot, "Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems," *Progress in energy and combustion science*, vol. 26, pp. 417-458, 2000.
- [145] E.-S. Cho and S. H. Chung, "Numerical evaluation of NO_x mechanisms in methane-air counterflow premixed flames," *Journal of mechanical science and technology*, vol. 23, pp. 659-666, 2009.
- [146] K. Maruta, "Micro and mesoscale combustion," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 33, pp. 125-150, 2011.
- [147] C. Law and C. Sung, "Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 26, pp. 459-505, 2000.
- [148] R. Ennetta, M. Hamdi, and R. Said, "Comparison of different chemical kinetic mechanisms of methane combustion in an internal combustion engine configuration," *Thermal Science*, vol. 12, pp. 43-51, 2008.

- [149] T. Takeno and M. Nishioka, "Species conservation and emission indices for flames described by similarity solutions," *Combustion and flame*, vol. 92, pp. 465-468, 1993.
- [150] P. Pilavachi, "Mini-and micro-gas turbines for combined heat and power," *Applied Thermal Engineering*, vol. 22, pp. 2003-2014, 2002.
- [151] S. Yuasa, K. Oshimi, H. Nose, and Y. Tennichi, "Concept and combustion characteristics of ultra-micro combustors with premixed flame," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 30, pp. 2455-2462, 2005.
- [152] H. Turbulence, K. Hanjali, Y. Nagano, and S. Jakirli, "Large Eddy Simulation of an ultra-micro combustion chamber," 2009.
- [153] K. Zhang, C. Rossi, M. Petrantoni, and N. Maura, "A nano initiator realized by integrating Al/CuO-based nanoenergetic materials with a Au/Pt/Cr microheater," *Journal of Microelectromechanical Systems*, vol. 17, pp. 832-836, 2008.
- [154] K. Zhang, C. Rossi, G. A. Ardila Rodriguez, C. Tenailleau, and P. Alphonse, "Development of a nano- AlCuO based energetic material on silicon substrate," *Applied Physics Letters*, vol. 91, 2007.
- [155] S. Zeinali Heris, S. Etemad, and M. Nasr Esfahany, "Experimental investigation of oxide nanofluids laminar flow convective heat transfer," *International Communications in Heat and Mass Transfer*, vol. 33, pp. 529-535, 2006.
- [156] S. T. Huxtable, D. G. Cahill, S. Shenogin, L. Xue, R. Ozisik, P. Barone, *et al.*, "Interfacial heat flow in carbon nanotube suspensions," *Nature Materials*, vol. 2, pp. 731-734, 2003.
- [157] K. Seshadri, "Multistep asymptotic analyses of flame structures," in *Symposium (International) on Combustion*, 1996, pp. 831-846.
- [158] E. Mallard and H. Le Chatelier, "Thermal model for flame propagation," *Ann. Mines*, vol. 4, pp. 379-568, 1883.
- [159] F. P. Incropera, A. S. Lavine, and D. P. DeWitt, *Fundamentals of heat and mass transfer*: John Wiley & Sons, 2011.
- [160] R. J. Kee, M. E. Coltrin, and P. Glarborg, *Chemically reacting flow: theory and practice*: John Wiley & Sons, 2005.
- [161] W. Sparreboom, A. Van Den Berg, and J. Eijkel, "Principles and applications of nanofluidic transport," *Nature Nanotechnology*, vol. 4, pp. 713-720, 2009.
- [162] A. Author, "Energy conversion in microsystems: Is there a role for micro/nanofluidics?," *Lab on a Chip*, vol. 7, pp. 1234-1237, 2007.
- [163] M. K. N. O. T. Sosso Mayi, M. B. Obounou Akong, J. Tonyi Agb bavi, "COMPUTATIONAL MODELLING OF PREMIXED METHANE/OXYGEN FLAME IN A MICROREACTOR WITH COMSOL 4.2A SOFTWARE," *9th European Congress of Chemical Engineering, Netherlands*, vol. 799, April 21-25 2013.

- [164] K. S. SOSSO O., OBOUNOU M. , AGBEBAVI J. , "EFFECT OF CHEMICAL KINETICS AND MOLECULAR DIFFUSION IN A METHANE-AIR PREMIXED FLAME ON MICROCOMBUSTION," *International Conference on Applied Energy, Pretoria, South Africa.*, Jul 1-4 2013.
- [165] M. B. A. O. O. T. Sosso Mayi, J. Tonyi Agbébavi, "CONTRAINTES DE LA MODELISATION EN MICRO ET NANO COMBUSTION " *80 ième congrés de l'Acfas, Montréal Canada*, 7-11 Mai 2012.
- [166] J. T. A. O.T. Sosso Mayi, M. B. Obounou Akong "Contraintes de la production d'Energie par la micro et nano combustion," *Concours d'affiches scientifiques, Université du Québec à Trois-Rivières*, 2012.

Index

Curriculum Vitae.....

CURRICULUM VITAE

SOSSO MAYI OLIVIER THIERRY

Tél : 819 376 5011 poste 3927

Cell : 819 699 2644

Olivier.Thierry.Sosso.Mayi@uqtc.ca,

O_SOSSO@yahoo.fr

Français / Anglais

1- Résumé

- Étudiant en fin de Doctorat en Ingénierie à l'Université du Québec à Trois-Rivières, avec pour objectif de soutenir ma thèse dans la période de Mai-Juin 2014.
- Chargé de cours au Cégep de Trois-Rivières, département de Mécanique de bâtiment où je donne le cours de Climatisation- ventilation.
- Chargé de cours de cours à l'UQTR j'ai dispensé le cours de thermodynamique, ayant moi-même préparé et rédigé ledit cours sous la supervision d'un professeur chevronné en la personne de Monsieur Dubé Yves.
- J'assiste plusieurs enseignants du département de Génie Mécanique et de génie chimique dans le cadre de leur cours. Les corrigés des exercices proposés par ces enseignants sont rédigés et présentés par moi. Un de ces cours se fait en ligne.
- J'ai enseigné à l'École Normale de l'Université de Douala Cameroun comme enseignant vacataire pendant plus de six ans, puis comme enseignant permanent pendant trois années, dans le département de Génie Électrique section froid et

climatisation. En plus j'ai enseigné dans les écoles d'enseignement technique et technologique de l'université de Douala (Institut Universitaire de Technologie(IUT), la Faculté de Génie Industrielle (FGI)).

- J'ai été formé comme enseignant de Lycée Technique à l'École Normale Supérieure d'Enseignement Technique, j'ai donc une bonne connaissance des techniques pédagogiques
- A la fin de mes études de Baccalauréat j'ai monté une entreprise (Four Services) pour la conception et la maintenance des systèmes de climatisation.
- Je suis entreprenant et très autonome.

2- Champs de compétences

- ✓ Bonne maîtrise des phénomènes d'échange.
- ✓ Bonne maîtrise des machines thermiques: machines de production de froid, moteurs à combustion interne, machines de production de chaleur.
- ✓ Bonne maîtrise des simulations des écoulements de fluides.
- ✓ Bonne maîtrise des méthodes pédagogiques.
- ✓ Capacités de vulgarisation scientifique, capacité à la recherche scientifique.

3- Expérience professionnelle

Cégep de Trois-Rivières : 2014

- Chargé de cours
- Climatisation Ventilation

Université du Québec à Trois-Rivières :
2014 -2012

- Chargé de cours
- Thermodynamique

Université du Québec à Trois-Rivières :
2014 -2011

- Étudiant Assistant
- Thermodynamique
- Hydraulique
- Phénomènes d'échange
- Méthodes des Éléments finis

Université de Douala : 2010-2008
Ecole Normale Supérieure
d'Enseignement Technique(ENSET)

- Enseignant permanent
- Machines transformatrices d'énergie
- Transfert thermique
- Production de froid
- Mécanique des fluides
- Aéraulique

Université de Douala : 2010-2004
IUT (Institut Universitaire de technologie)

- Enseignant vacataire
- Thermique Industrielle
- Efficacité Énergétique
- Pratique de froid

Université de Douala : 2010-2008 FGI
(Faculté de Génie Industrielle)

- Enseignant vacataire
- Hydraulique
- Moteurs à combustion interne

4- Autres expériences

Université du Québec à Trois-Rivières : 2014 -2011	- Brigade d'informations ➤ Accueil des étudiants
Université du Québec à Trois-Rivières : 2014 -2013	- École Internationale de français (ÉIF) ➤ Technicien à l'action communautaire

5- Travaux de recherche

Titre de la thèse : Modélisation des flammes et de la production des polluants en Micro et Nano combustion.	
Travaux effectués dans le cadre de ma thèse de Doctorat, durant la période courant de 2010 – 2014	<p>1- Article de journal scientifique</p> <p>Numerical simulation of premixed methane/air micro flame: effects of simplified one step chemical kinetic mechanisms on the flame stability. (<i>Article soumis, Applied thermal Engineering, Février 2014, publié en Août 2014</i>)</p> <p>2- Article de journal scientifique</p> <p>Numerical evaluation of pollutants emissions in premixed methane/air micro flame. (<i>Article soumis, Combustion and Flame, Avril 2014</i>)</p> <p>3- Conférences Internationales</p> <p>➤ 2014; MRS Spring Meeting & Exhibit, Chicago, USA. Poster: IMPACT OF SINGLE KINETIC MECHANISM</p>

MODELS ON MICRO FLAME.

- **2013;** 9th congrès Européen de Génie chimique, Amsterdam, Pays Bas.
Poster : [163] COMPUTATIONAL MODELLING OF PREMIXED METHANE/OXYGEN FLAME IN A MICROREACTOR WITH COMSOL 4.2A SOFTWARE
 - **2013;** International conference of Applied Energy, Pretoria, Afrique du Sud.
Présentation libre : [164] EFFECT OF CHEMICAL KINETICS AND MOLECULAR DIFFUSION IN AMETHANE-AIR PREMIXED FLAME ON MICROCOMBUSTION
 - **2012;** 80^{ème} Congrès de l'Acfas, Montreal, Canada.
Communication libre: [165] CONTRAINTES DE LA MODÉLISATION EN MICRO ET NANO COMBUSTION
- 4- Doctoriales (UQTR)
- **2012;** Concours d'affiches Scientifiques à l'UQTR

Poster : [166] CONTRAINTES DE LA PRODUCTION D'ÉNERGIE PAR LA MICRO ET NANO COMBUSTION
- 5- Concours : Ma thèse en 180 secondes
- **2012;** Lauréat au concours ma thèse en 180 secondes à l'UQTR
- 6- Concours (Provincial) : Ma thèse en 180 secondes
- **2012;** Participation au 80^{ème} congrès de l'Acfas au concours de présentation

Travail effectué dans le cadre de mon DEA courant de 2005-2007

de ma thèse en 180 secondes.

- 7- Rédaction de mon mémoire : Calcul de la surconsommation de carburant des voitures climatisées en Afrique Tropicale

Travail effectué dans le cadre de mon Master de Technologie : 2000-2002

- 8- Rédaction de mon mémoire : Synthèse des audits énergétiques du Cameroun

6- Compétences supplémentaires

Consultation : 2013

- 1- J'ai fait des travaux de simulation pour le groupe GLV afin de les aider à résoudre un problème de turbulence dans l'écoulement de la pâte à papier.

Formation : 2006-2007

- 2- J'ai été formé par des enseignants du CEGEP de Trois-Rivières au Cameroun dans la rédaction des programmes pédagogiques par l'approche par compétence

Formation : 2006-2007

- 3- J'ai suivi une formation en hygiène et salubrité des aliments, sur la norme HACCP, ISO 22000

Travaux : 2008-1997

- 4- Conception et maintenance des systèmes de ventilation climatisation. J'ai dirigé plusieurs équipes de techniciens dans ce cadre.

Encadrement : 2010-2006

- 5- J'ai dirigé plusieurs étudiants pour leurs travaux de réalisation de maquettes dans le cadre de l'obtention de leur diplôme de Baccalauréat.

Membre de Jury: 2006-2007

- 6- J'ai fait partir de plusieurs jurys pour des examens de fin de formation de Baccalauréat à l'IUT, à l'ENSET de l'université de Douala
- 7- J'ai été choisi pour faire partir du jury du concours 2013 de ma thèse en 180 secondes, au vu de ma prestation qui a été visionnée près de 200 fois sur youtube.

7- Formation et diplômes

Université du Québec à Trois-Rivières, Canada 2014 -2010

- 1- **Doctorant en Ingénierie**, Programme 3737
Spécialité, Production d'Énergie

Université de Douala
Unités de formation doctorales
Cameroun 2007 -2005

- 2- **D.E.A. en Énergie**
Spécialité, Production d'Énergie

Université de Douala
Ecole Normale Supérieure
d'Enseignement Technique (ENSET)
Cameroun 2002-2000

- 3- **Maitrise de Technologie, DIPET II :**
Spécialité, Froid et Climatisation

8- Bourses et prix

UQTR : 2014

- 1- Bourse du décanat aux études supérieures de l'UQTR, Aide à la diffusion

UQTR : 2014

- 2- Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers

UQTR : 2013	3- Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers
UQTR : 2013	4- Bourse du décanat aux études supérieures de l'UQTR, Aide à la diffusion
UQTR : 2011	5- Bourse de la fondation de l'UQTR, étudiants étrangers
Université de Douala (UD) : 2011	6- Bourse de formation des formateurs
Ministère de l'Enseignement Supérieur (MINSUP), Cameroun : 2010	7- Bourse de formation des formateurs

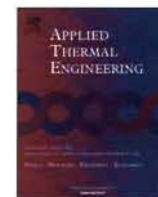
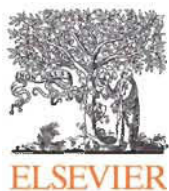
9- Connaissances en Informatique

- Utilisation Usuelle : Word, Excel, Internet
- Logiciels de Programmation : Langage C, Visual Basic
- Logiciels de simulation : HYSIS, FLUENT, COMSOL

**Annexe A – Premier article tel que publié au journal Applied
Thermal Engineering**

**Annexe B – Deuxième article tel que soumis au Journal
Combustion and Flame**

Annexe C – Analyse Technico économique de la mise sur pied d'un MPG



Numerical simulation of premixed methane/air micro flame: Effects of simplified one step chemical kinetic mechanisms on the flame stability



O.T. Sosso Mayi ^{a, e}, S. Kenfack ^c, M.K. Ndamé ^d, M.B. Obounou Akong ^c,
J. Tonyi Agbébavi ^{b, *}

^a Department of Industrial Engineering, University of Quebec at Trois-Rivières, C.P. 500, Trois-Rivières, Québec G9A 5H7, Canada

^b Department of Chemical Engineering, University of Quebec at Trois-Rivières, C.P. 500, Trois-Rivières, Québec G9A 5H7, Canada

^c Department of Physics and Energy, University of Yaoundé I, Cameroon, BP 337 Yaoundé, Cameroon

^d Department of Thermal and Energy Engineering, UIT of Douala University, Cameroon, BP 1872 Douala, Cameroon

^e Department of Electrical Engineering, ENSET of Douala University, Cameroon, BP 1872 Douala, Cameroon

HIGHLIGHTS

- We simulate a methane/air micro flame with three single-step reaction models.
- We analyze the interplay of simplified chemical kinetic mechanism on the flame structure.
- The variation of the reaction zone causes blow out, flash back or hot spot effects.
- Models show either convex formed, stable elongated or rapid extinction flame.

ARTICLE INFO

Article history:

Received 28 February 2014

Accepted 24 July 2014

Available online 11 August 2014

Keywords:

Simplified chemical kinetic models

Flame

Micro combustion reactor

Numerical simulation

ABSTRACT

The effects of a simplified one step overall chemical kinetic equation on a micro flame were investigated with different kinetics models, namely Mantel, Duterque and the so called Arrhenius models. A numerical study of a premixed methane/air flame in lean conditions ($\phi = 0.9$) within a rectangular tubular micro reactor was undertaken by solving the 2D governing equations. More precisely, their influence on the structure of the flame, the temperature of the fluid along the axial displacement of the reactor and the walls temperatures were analyzed. The results show that one step chemical kinetic mechanism affected both the shape of the flame and the combustion temperature whose magnitude is globally overestimated, corroborating the results in the existing literature. Among the three simulated models, the Mantel model allowed a stable flame anchored to the inlet reactor with a convex form, while the Duterque model gave a stable elongated flame with considerable ignition delay. A dead zone is observed with fluid accumulation at the entrance of the reactor which may explain the strong reaction rate and the very high combustion temperature obtained, despite the development of a flame in the form of a very hot illuminated spot lit all around. The so called Arrhenius model resulted in a rapid extinction of the flame and does not seem to take into account all the kinetic phenomena for appropriate numerical simulations of the micro combustion. Furthermore the one step overall chemical kinetic approach seems to determine the initial temperature applicable for both fluid flow area and the walls of the micro reactor that favors the inset of premixed mixture combustion during micro combustion calculations.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

1. Introduction

Micro and nano systems for energy production (MNPG) based on the combustion of hydrocarbons have become a very active topic of research recently and are made possible by the advances in the numerical modeling tools [1–3]. These tools have permitted to solve the problems of propagation of self sustained flame in

* Corresponding author. Tel.: +1 819 376 5011x3916.

E-mail addresses: James-Tonyi.agbebavi@uqtr.ca, agbebavi@yahoo.com (J.T. Agbébavi).

combustors, with very small dimensions. They have helped to enhance the MNPG performance in order to approach and reproduce practical conditions with acceptable accuracy. To get a deep understanding on the structure of micro flames, flame stability as well as the interactions between flame and wall have been studied [4,5]. The use of the numerical modeling to study the micro-combustion of hydrocarbons requires a judicious choice of the chemical kinetic mechanisms. The simpler the model is, the better its applications in computational simulations.

Efforts to generate simple chemistry models trace back to the early works of Westbrook and Dryer [6], who proposed several one step chemical kinetic mechanism models for different fuel (Table 1). Their development was based on computations of laminar premixed flames, leading to a set of optimum chemical kinetic parameters (activation energy, preexponential factor and reaction orders of fuel and oxidizer) that best fitted the main parameters of premixed combustion. These models set to be applying in macro combustion were also successfully tested in the micro-combustion studies during the last decade with reliable results. For example D.G. Vlachos et al. used a one step chemical kinetic mechanism to study; the combustion characteristics and flame stability at the micro scale [7], the extending the region of stable homogeneous micro-combustion through forced unsteady operation [8], and the optimal reactor dimensions for an homogeneous combustion in small channels. Recently, Atur Gutkowski used one step overall chemical kinetic model to perform a numerical analysis of effect of ignition methods on flame behavior during passing through a sudden contraction near the quenching conditions. However, in all these works, authors were obliged to adjust the value of fuel exponent in order to avoid a simulation failure.

Although relevant models proposed by Westbrook and Dryer are currently used in micro flame simulations with few modifications, other researchers also proposed simplified models with one step overall equation. The Duterque model [9], was used by Ennetta, Ridha et al., to compare different chemical kinetics mechanisms of methane combustion in an internal engine configuration [10]. Mantel et al., used a model with stoichiometric concentration exponents and proposed a methodology to determine kinetic parameters for one and two-step chemical models [11]. Fernandez-Tarrazo et al., tested what they named a so called Arrhenius one step kinetic model on the combustion of partially premixed hydrocarbon [12].

Table 1

The reported Westbrook and Dryer [6] single-step reaction rate parameters giving best agreement between experimental flammability limits (ϕ'_L and ϕ'_R) and computed flammability limits (ϕ_L and ϕ_R) (units are cm-sec-mole-kcal-Kelvins).

Fuel	A	Ea	a	b	ϕ'_L	ϕ_L	ϕ'_R	ϕ_R
CH ₄	1.3×10^8	48.4	−0.3	1.3	0.5	0.5	1.6	1.6
CH ₄	8.3×10^5	30.0	−0.3	1.3	0.5	0.5	1.6	1.6
C ₂ H ₆	1.1×10^{12}	30.0	0.1	1.65	0.5	0.5	2.7	3.1
C ₃ H ₈	8.6×10^{11}	30.0	0.1	1.65	0.5	0.5	2.8	3.2
C ₄ H ₁₀	7.4×10^{11}	30.0	0.15	1.6	0.5	0.5	3.3	3.4
C ₅ H ₁₂	6.4×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	3.6	3.7
C ₆ H ₁₄	5.7×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.0	4.1
C ₇ H ₁₆	5.1×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.5	4.5
C ₈ H ₁₈	4.6×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₈ H ₁₆	7.2×10^{12}	40.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₉ H ₂₀	4.2×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.3	4.5
C ₁₀ H ₂₂	3.8×10^{11}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.2	4.5
CH ₃ OH	3.2×10^{12}	30.0	0.25	1.5	0.5	0.5	4.1	4.0
C ₂ H ₅ OH	1.5×10^{12}	30.0	0.15	1.6	0.5	0.5	3.4	3.6
C ₆ H ₆	2.0×10^{11}	30.0	−0.1	1.85	0.5	0.5	3.4	3.6
C ₇ H ₈	1.6×10^{11}	30.0	−0.1	1.85	0.5	0.5	3.2	3.5
C ₂ H ₄	2.0×10^{12}	30.0	0.1	1.65	0.4	0.4	6.7	6.5
C ₃ H ₆	4.2×10^{11}	30.0	−0.1	1.85	0.5	0.5	2.8	3.0
C ₂ H ₂	6.5×10^{12}	30.0	−0.2	1.25	0.3	0.3	>10.0	>10

The Mantel, Duterque and Fernandez-Terrazo models are adapted Arrhenius models, and they have been proven to accurately describe the hydrocarbons macro combustion phenomenon. However, they have not yet been investigated in micro combustion. Therefore it is of interest to analyze the production, the stability and the overall micro flame behavior with these three models, through numerical simulations in micro combustion. In the best of our knowledge, that is the first report describing the interplay of chemical kinetic mechanism on the position and the flame shape in micro combustion. The three different chemical kinetic mechanism models have been used to perform a numerical analysis of premixed micro combustion of hydrocarbon-air. They were chosen for their simplicity and without needing any modifications. The premixed methane-air has been chosen as mixture, and several parameters have been investigated, such as, wall temperature, axial temperature of reacting flows, reaction rate, the shape and position of micro flame in lean conditions.

Premixed mixture methane/air feeds a tubular 2D parallel plate, whose dimensions are: 600 μ m for the gap and a length of 10,000 μ m, as shown in Fig. 1(a), with alumina walls of 200 μ m thickness. The input velocity of the reactants is 0.5 m/s. All calculations were made with COMSOL 4.2a software [13], by using reaction engineering, laminar flow, transport and concentrated species and heat transfer modules to implement our system. The origin is fixed at the center of the inlet of the micro reactor, x depicts the axial or downstream distance, while y represents the vertical distance or distance from the centerline of the micro reactor. The assumptions is made that the component of the swirling velocity is zero, allowing only a symmetrical study by the center of the micro reactor; only half of the micro reactor will be considered in the calculations, thereby reducing the computational time. Moreover, we consider that there is no Dufour effects [14], no gas radiation [7,15]; no work done by viscous forces and pressure, and steady state conditions are prescribed. Thus, this study presents the effects of simplified one step chemical kinetic mechanisms on the flame stability.

2. Method

The study of the reactive flow is done in two steps, the first using the reaction engineering module, which sets the selected chemical kinetics mechanism and the analysis of combustion in a reactor model as a plug flow model. It also evaluates all thermodynamic and transport data to achieve combustion in a practical reactor as shown in Fig. 1. The second step is the multi-physical coupling of the reaction engineering module with, the transport and concentrated species, heat transfer and laminar flow modules to establish the species transport, heat transfer in gas phase and solid phase, and the flow regime.

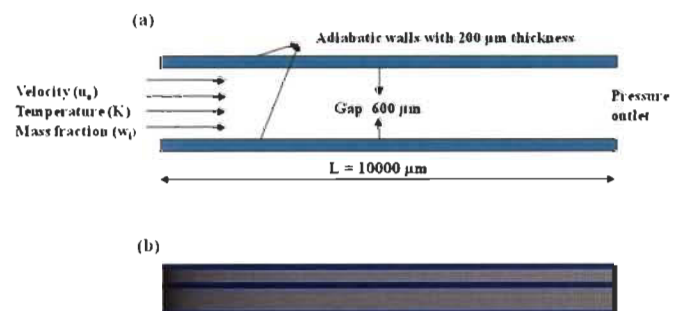
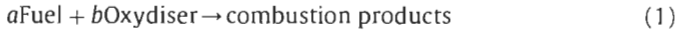


Fig. 1. (a) Schematic of computational domain along with a description of some of the boundary conditions used in the model and (b) Mesh used in these simulations. More nodes are placed around the reaction zone.

2.1. Reaction engineering module

Reaction Engineering Module allows the study of chemical kinetics in different reactor models and sets up the chemical kinetics mechanism which was defined in advance. It calculates the thermodynamic and transport parameters through equations (1)–(3). In our study, we have chosen one simplified chemical kinetic equation and five species namely hydrocarbon, oxygen, nitrogen, Carbone dioxide and water.



The source term is given by reaction rate equation:

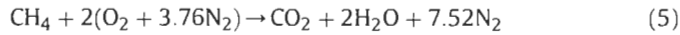
$$R_j = k^f \prod_{i=1}^{Q_j} c_i^{\nu_j} \quad (2)$$

$$k^f = A T^n \exp\left(-\frac{E_a}{R_g T}\right) \quad (3)$$

It's common to write reaction rate equation as:

$$R_j = A \exp\left(-\frac{E_a}{R_g T}\right) c_{\text{Fuel}}^a c_{\text{Oxydant}}^b \quad (4)$$

Chemical equation is:



In the equations (2)–(4), R_j (mol/m³/s) are reaction rate of j species, in our work it's methane, ν is the partial order of the reaction with respect to species j , Q_j is the quantity of species, k^f (1/s) is reaction rate constant, A (consistent unit) is the pre-exponential factor, E_a (J/mol), is activation energy R_g (8.314 J/mol/K) is the universal gas constant, T (K) is the temperature, c (mol/m³) is the molar concentration, n is the temperature exponent equal to zero, a and b are the concentration exponents or the partial orders of reaction.

In the equation (4), the unknown parameters set is the pre-exponential factor A , concentration exponents a , b , Activation Energy E_a which are defined through a comparative simulation between the flame speed, the velocity flow and the experimental data [16]. Each parameter mentioned above has to be determined. If activation energy is less difficult to find, it's not the case of other parameters. When simulating combustion phenomena by Comsol 4.2a, chemical kinetic mechanism proposed by the software is the equation (6) below, nevertheless, Westbrook, C. K. and F. L. Dryer [6], showed that to stabilize the flame inside the reactor, the concentration exponents a and b cannot be those defined from the stoichiometric conditions as presented in equation (6), rather they must comply with the conditions $a \ll 1$ and $0 < b \ll 2$, which require to find them. They proposed a set of one step chemical

kinetic models to study the combustion phenomena as presented in Table 1.

$$R = A \exp\left(-\frac{E_a}{R_g T}\right) c_{\text{Fuel}}^1 c_{\text{Oxydant}}^2 \quad (6)$$

Many researchers used the proposed models for their work with or without modifications as illustrated in Table 3. When using methane as fuel, the fuel concentration exponent (a) was changed [7], while it was not the case for propane [15,17].

The determination of parameters such as the pre-exponential factor, activation energy, concentration exponent demands more calculations that depend on several factors such as the composition of the mixture, the transport properties of the fluid and even the size of the mesh used [17]. In Table 2 we present numerical studies done in micro combustion with detailed and single chemical kinetic mechanisms. The choice of the selected models for our study was dictated by their simplicity and their wide usage. These are defined by equations (7)–(9).

$$R_{\text{CH}_4} (\text{mol/m}^3\text{s}) = 9.1 \times 10^{19} \exp\left(\frac{-1.045 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) c_{\text{CH}_4}^1 \cdot c_{\text{O}_2}^2 \quad (7)$$

$$R_{\text{CH}_4} (\text{mol/m}^3\text{s}) = 6.9 \times 10^8 \exp\left(\frac{-1.321 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) c_{\text{CH}_4} \cdot c_{\text{O}_2} \quad (8)$$

$$R_{\text{CH}_4} (\text{mol/m}^3\text{s}) = 1.50 \times 10^{13} \exp\left(\frac{-2.03 \cdot 10^5}{R \cdot T}\right) c_{\text{CH}_4}^{0.7} \cdot c_{\text{O}_2}^{1.3} \quad (9)$$

In this work, we will do a sensitivity analysis of the stability of premixed methane/air micro flame through three chemical kinetics models with one step global equation, namely Mantel, so called Arrhenius and Duterrque models, respectively defined by equations (7)–(9). The obtained results will be compared with that existing in literature taking as reference cases, Norton, D. G. and D. G. Vlachos who used an overall one step global equation [7], J. Li et al. who used a detailed chemical kinetic mechanism [18].

2.2. Numerical model

- Since the flow regime is laminar with one Reynolds number less than 2000 ($Re = 74.83$) the Laminar flow module describes the flow of fluid along the axial displacement of the reactor. It is defined by the equations of continuity and momentum [9, 10].
- The Heat transfer module in the fluid expresses the heat transfer through the fluid along the axial displacement of the reactor. It is defined by the equation of energy [11].
- Transport and Concentrated species Module, describes the transport of species in determining the transport coefficients. It is defined by the equation of conservation of species transport [12, 13].

Table 2

Comprehensive overview of numerical investigations done with simplified or detailed chemical mechanisms with simple geometries in micro combustion.

Fuel-oxidizer	Combustor geometry	Combustor size	Reaction mechanism	References
CH ₄ /air Fuel lean	Plane channel	H = 1 mm, L = 10 mm	Detailed gas-phase and surface reactions	[23]
C ₃ H ₈ /air	Parallel plates	H = 600 μm, L = 10 mm	One-step global reaction	[15]
CH ₄ /air $\phi = 0.9$	Parallel plates	H = 600 μm, L = 10 mm	One-step global reaction	[7]
H ₂ /air $\phi = 0.9$	Cylindrical chamber	d = 0.1 mm	Detailed gas-phase reactions	[24]
CH ₄ /air, C ₃ H ₈ /air $\phi = 0.9$	Parallel plates	H = 600 μm, L = 10 mm	One-step global reaction	[8]
H ₂ /air $\phi = 0.5$	Cylindrical tube and parallel plates	d = 0.4–0.8 mm	Detailed gas-phase reactions	[25]
CH ₄ /air $\phi = 0.9$	Cylindrical tube and parallel plates	d = 1–2 mm	Detailed gas-phase reactions	[18]
CH ₄ /air	Cylindrical tube		One-step global reaction	[26]
H ₂ /air	Parallel disk	H = 0.15–0.3 mm	One-step global reaction	[27]
CH ₄ /air $\phi = 0.9$	Cylindrical tube with sudden contraction	d = 6.0–1.6 mm	One-step global reaction	[17]

The 2D governing equations are defined as follows:

$$\nabla \cdot (\rho u) = 0 \quad (10)$$

$$\rho(u \cdot \nabla)u = \nabla \cdot \left[pI + \rho \left(\nabla u + (\nabla u)^T - \frac{2}{3} \mu (u \cdot \nabla)I \right) \right] + F \quad (11)$$

$$\rho C_p u \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad (12)$$

$$\nabla \cdot (k_w \nabla T) = 0 \quad (13)$$

$$\nabla \cdot j_j + \rho(u \cdot \nabla)\omega_j = R_j \quad (14)$$

$$j_j = - \left(\rho D_j^m \nabla \omega_j + \rho \omega_j D_j^m \frac{\nabla M_n}{M_n} + D_j^T \frac{\nabla T}{T} \right) \quad (15)$$

$$Q = -H_{sr}R_j \quad (16)$$

$$D_j^m = \frac{1 - \omega_j}{\sum_{k \neq i} \frac{x_k}{D_{jk}}} \quad (17)$$

$$M_n = \left(\sum_i \frac{\omega_i}{M_i} \right)^{-1} \quad (18)$$

$$\rho = \frac{P}{RT} M_n \quad (19)$$

In these equations, ρ (kg/m³) is the density of the reactants, μ the dynamic viscosity (Pa.s), k (W/mK) the thermal conductivity of the mixture, k_w (W/mK) the thermal conductivity of the wall, C_p (J/kgK) the specific heat, M_j (kg/mol) is the molar mass of each species, M_n (kg/mol) is the molar mass of the mixture, p (Pa) is the pressure. H_{sr} (J/mol) is the enthalpy of formation of species, the mass fraction w_i and D_{jk} (m²/s) is the multi component Maxwell–Stefan diffusivity.

The 2D governing equations are discretized by the finite element method and solved by Comsol 4.2a [13]. The equations are solved implicitly with a separate 2D solver using a method of relaxation, while computing the first equations of momentum and the continuity, followed by an update of the pressure and mass flow, energy and species transport equations. The iterations are controlled and monitored until a convergent solution is obtained. The convergence criteria for residuals are 1×10^{-3} for all equations. The gas density is calculated using the ideal gas law. The gas viscosity, specific heat and thermal conductivity are based on the average of the mass fraction of all species.

The boundary conditions are such that we have, at the inlet a linear velocity of $u_0 = 0.5$ m/s, the choice of this velocity being justified by the fact that it is close to the combustion speed of methane (0.40 m/s), in addition it is one of the parameters of the flame stability in a micro reactor [10]. The uniform inlet temperature is 300 K at the center of the micro reactor, the mass fraction $w_{CH_4} = 0.055$, the equivalent ratio of the fuel is such that $\phi = 0.9$, the choice of composition of the mixture is inferred by the fact that quenching distance for a stoichiometric composition is lower than that of lean mixtures [17,18]. The inlet and outlet pressure are set to 1 atm, no-slip boundary condition is imposed at the solid–fluid interface $u = 0$ m/s, the walls are considered as adiabatic walls, the heat flux is calculated from Fourier's law, the continuity of the temperature and the heat flux create the link between the gas and

solid phase. In our simulations, a non-regular mesh is used with more nodes concentrated at the inlet reactor, around the reaction zone. The computations were performed with 4320 nodes (Fig. 1(b)).

3. Results and discussion

3.1. Reference cases

Two works on the numerical simulation of a premixed methane/air micro flame one with a detailed and the other with a simplified kinetic mechanism for a comprehensive kinetic model equation were chosen as a framework to compare and assess the relevance of the results of our simulations.

First J. Li et al. [18] performed a numerical study of premixed flame methane/air through a cylindrical micro reactor with 1 mm radius, detailed chemical kinetics mechanism were used with 25 equations and 16 species, the reactor used is almost equivalent to that of our study if we consider the relationship between the two configurations $H = 0.65$.d [18]. The results show a convex steady flame, the inlet temperature of the reactive fluid is 300 K, the initial velocity is $u_0 = 0.5$ m/s, the initial preheating temperature is 1600 K. From the analysis of temperature profile, we note that the fluid paths a distance of 0.008 m with the same initial temperature before preheating and reach the ignition temperature to 1200 K. The temperature increases to reach a maximum of 1900 K at $x = 0.004$ m and decreases slightly to 1850 K, then remains constant along the rest of the micro reactor. From this work we can underline that the detailed chemical kinetics provides a temperature below the adiabatic combustion temperature of methane.

Second DG Norton and DG Vlachos [7] studied the characteristics and combustion stability of a premixed methane–air flame on a microscopic scale, they proposed a numerical study by using a single one step chemical kinetic mechanism model provide by Westbrook and Dryer work as illustrated in Table 3, they used for their simulations Fluent software [7], the reactor configuration they used is of the same form as that used in our study as shown in Fig. 1(a). The initial preheating temperature for all simulations was 1000 K to allow ignition of the reaction mixture. A stable flame in lean combustion conditions ($\phi = 0.9$), velocity of input reactants 0.3–0.8 m/s was simulated. The predicted flame reached a maximum of 2280 K at a distance $x = 0.0018$ m from the inlet of the reactor, although the temperature reached is overestimated because above to the adiabatic temperature, it is not a limit for the single one step kinetic model. The temperature of the combustion products was evaluated as 1500 K at the outlet of the reactor, while the walls ranged from 1000 K at the reactor inlet, and reached a peak of 1600 K at the reaction zone, and after a slight decrease in temperature up to 1500 K was observed at the exit. It appears from this study that the overall kinetic model equation allow simulation of a micro flame and can lead to a reliable analysis of parameters of a micro reactor, especially if we limit our analysis to the heat transfer exchange.

Table 3

Single-step reaction rate parameters already used in micro flame simulation.

Fuel	A	Ea (J/kgmol/K)	a	b	Conform with Westbrook and Dryer's work	Reference
CH ₄	2.119×10^{11}	2.027×10^8	0.2	1.3	a modified	[7,8,28]
CH ₄		2.027×10^8	0.2	1.3	A and a modified	[26]
C ₃ H ₈	4.836×10^9	1.256×10^8	0.1	1.65	A modified	[8,15,28]
C ₃ H ₈	1.686×10^{10}	1.256×10^8	0.1	1.65	A modified	[17]
H ₂					Modeled	[27]

3.2. Effects of one step chemical kinetic mechanism on the micro flame structure

For all three chemical kinetics models simulated a stable flame was observed but their shapes are totally different from each other. Fig. 2(a) shows the flame obtained with Mantel model, we observe one flame developed at the inlet of the micro reactor, with a particularly convex shape. The mechanism of flame propagation between parallel plates was investigated by Hackert et al. [19] they observed the tulip-shaped flame, however we find the same convex flame in [18]. The developed thickness of the flame can be estimated

at 0.001 m, which is in the order of magnitude of the value of the thickness of the flame produced with gaseous fuels. Fig. 2(b) shows the rate of conversion of methane, it is clear that all the methane is consumed in the reaction zone, the mass fraction at the inlet is 0.055 only after 0.002 m it becomes zero. The fact that the concentrations exponents meet the stoichiometric coefficients of the reaction of methane combustion can explain the total oxidation of methane. Fig. 3(b) shows the profile of the rate of reaction of methane. It appears that the combustion was rapid despite the small thickness of flame zone; the combustion is complete and limited in the flow space.

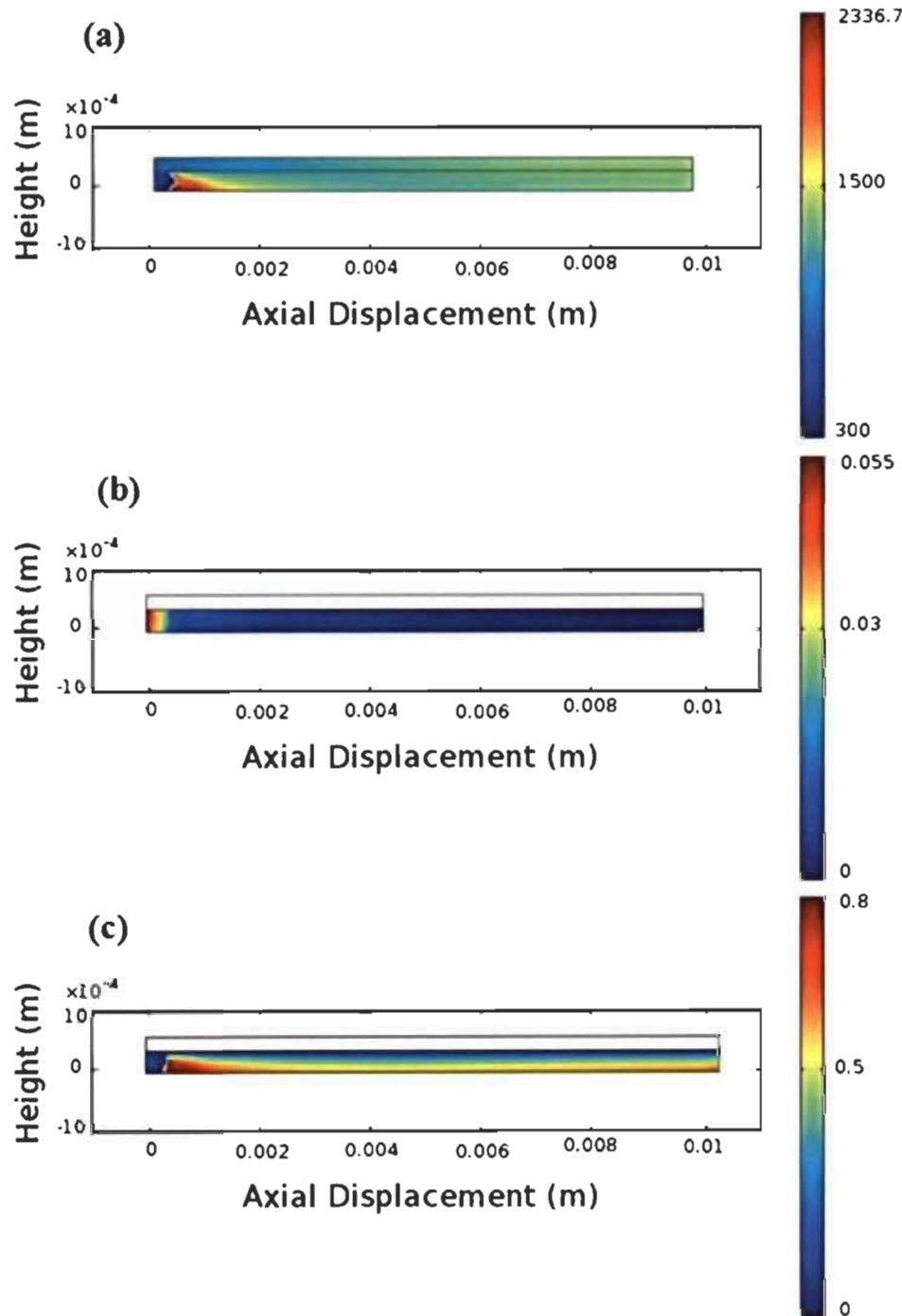


Fig. 2. Contours of temperature for both solid and gas phase (a); methane mass fraction for gas phase (b) axial velocity for gas phase (c), resulting of Mantel's Kinetic model computation.

Fig. 4(a) shows the predicted flame with Duterque chemical kinetics model, in this case the flame begins to take shape after 0.0018 m and therefore much later than that simulated with the Mantel model, the obtained flame is rounded, the reaction zone is broadened, the thickness of the flame is estimated at 0.003 m. This broadening of the reaction zone can be explained by the accumulation of fluid that seems to exist in the inlet reactor, because the ignition is not instantaneous, the mixture burns so much longer as may be confirmed by the profile of reaction rate in Fig. 5(b). Fig. 4(b) shows the conversion of methane, it may be noted here that if all the methane burns completely, the blowout phenomenon may appear here.

Fig. 6(a) shows the predicted flame using the so called chemical kinetic Arrhenius model, in this case the combustion is very fast and occurs quite in the inlet of the reactor (0.0005 m) with instantaneous quench, the risk of flashback is high because the reaction zone is relatively narrow. It has a cell shape with illumination around a very hot spot in the center of the inlet of the micro reactor, and therefore the risk of damage the wall material in this space is present. Fig. 6(b) shows that the methane conversion is partial, highly incomplete; the reaction rate profile confirmed that the reaction proceeds on a thin layer. Westbrook and Dryer predicted in Ref. [6] that, combustion with such a model is impossible. But years later, Fernandez-Tarrazo et al. [12] demonstrated that with lean combustion and in the case of macro combustion such a

model could be used, which does not seem to be the case in micro combustion, at least in the configuration of two parallel plate simulated.

It should be noted that the combustion in both reference cases generated different flame structures, the flame produced in Ref. [18] is similar to that simulated with the Mantel model, while that produced in Ref. [7] has a shape close to that produced with the so called Arrhenius model. In addition, the delay observed in the ignition of the flame with the Duterque model should not be, as it is known that the combustion with reduced kinetic model occurs early compared to one with a detailed chemical kinetics. The reason for this difference in the ignition of the mixture is that the chemistry in the case of reduced kinetic models is infinitely abrupt [12,16]. This can be deduced from the flame structure obtained, that the chemical time τ_c in the Mantel model may be substantially equal to that of the residence time τ_r , which would explain the formation of the flame anchored to the inlet of the micro reactor, whereas in the case of Duterque model respectively the so called Arrhenius model, chemical τ_c time would be less, respectively greater than the residence time τ_r , where the broadening of the flame in the first case and the sudden extinction in the second are observed.

It is clear in the light of simulation results that, the overall one step chemical kinetic model has a strong influence on the overall structure of the flame and the combustion process in a micro reactor.

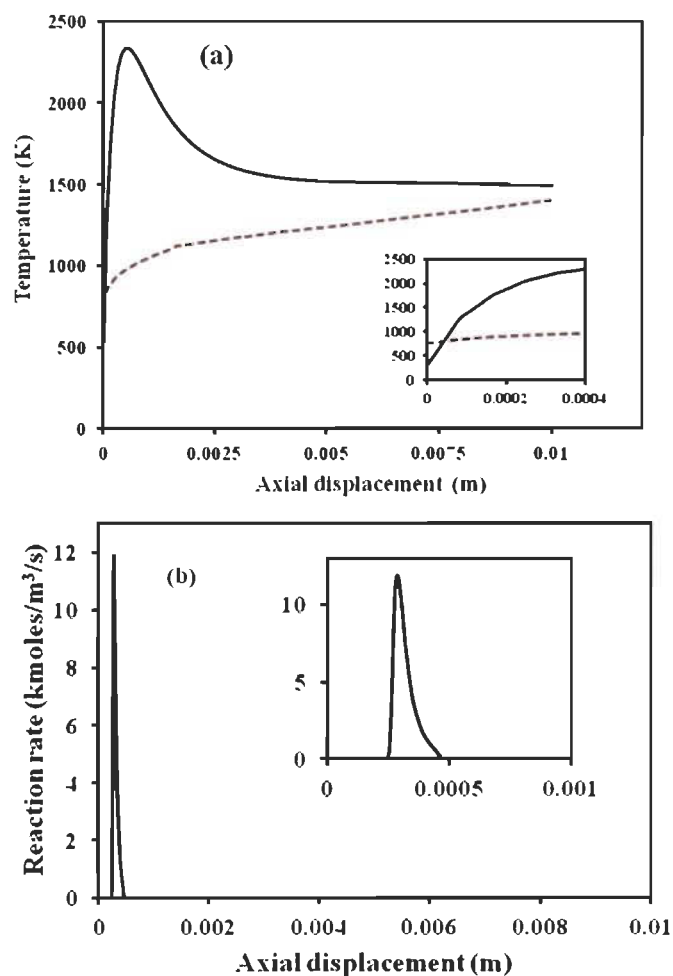


Fig. 3. (a) Temperature profiles along the fluid centerline (solid-line) and wall (dot-line) Its inset show the expending view of the inlet temperature profile; (b) reaction rate profile along the fluid centerline resulting of Mantel's Kinetic model computation.

3.3. Effects of one step chemical kinetic mechanism on the axial displacement temperature

Fig. 3(a) shows the temperature profile obtained with the kinetic Mantel model, the initial inlet temperature of the mixture is 300 K, after 0.0005 m the temperature begins to increase, contact with the wall preheated the reactants and the temperature jump to 1200 K, once the temperature reaches approximately 1250 K, the ignition switched on the reaction mixture, the combustion occurs rapidly and the temperature reached a maximum with an extremum point at 2350 K greater than the adiabatic temperature of methane which is about 2130 K for an equivalent ratio $\phi = 0.9$. The heat propagates along the walls as well as within the micro reactor, the temperature then drops at $x = 0.0025$ m to 1500 K where it stabilizes at the outlet of the combustion products. The temperature profile is almost similar to the flame simulated in Ref. [7].

Fig. 5(a) shows the evolution of the temperature along the axis of the micro reactor simulated with the Duterque model, the temperature profile shows a sawtooth evolution in the inlet of the reactor, suggesting a delay in the ignition of the mixture and the temperature of the incoming cold reactant will be maintained at 300 K over a distance approaching 0.0008 m, thereafter the temperature will rise up to 1500 K where ignition occurs. Complete combustion occurs at $x = 0.0015$ m, where the temperature of the flame reaches its maximum at 2500 K. The quench of the flame will be at almost half the micro reactor while the temperature is still at 1700 K, the temperature is kept constant at this value until the output of the combustion products. It is clear that the temperature values in this case are strongly overestimated, although the temperature of the combustion products in the case of simulations in Ref. [18] are of the same order of magnitude.

Fig. 7(a) shows the evolution of the temperature along the center of the micro reactor with the so called Arrhenius model. The temperature of the mixture at the inlet is 300 K and undergoes an abrupt change early and almost from the inlet, the maximum temperature is quickly reached at 2100 K, barely reached, it drops

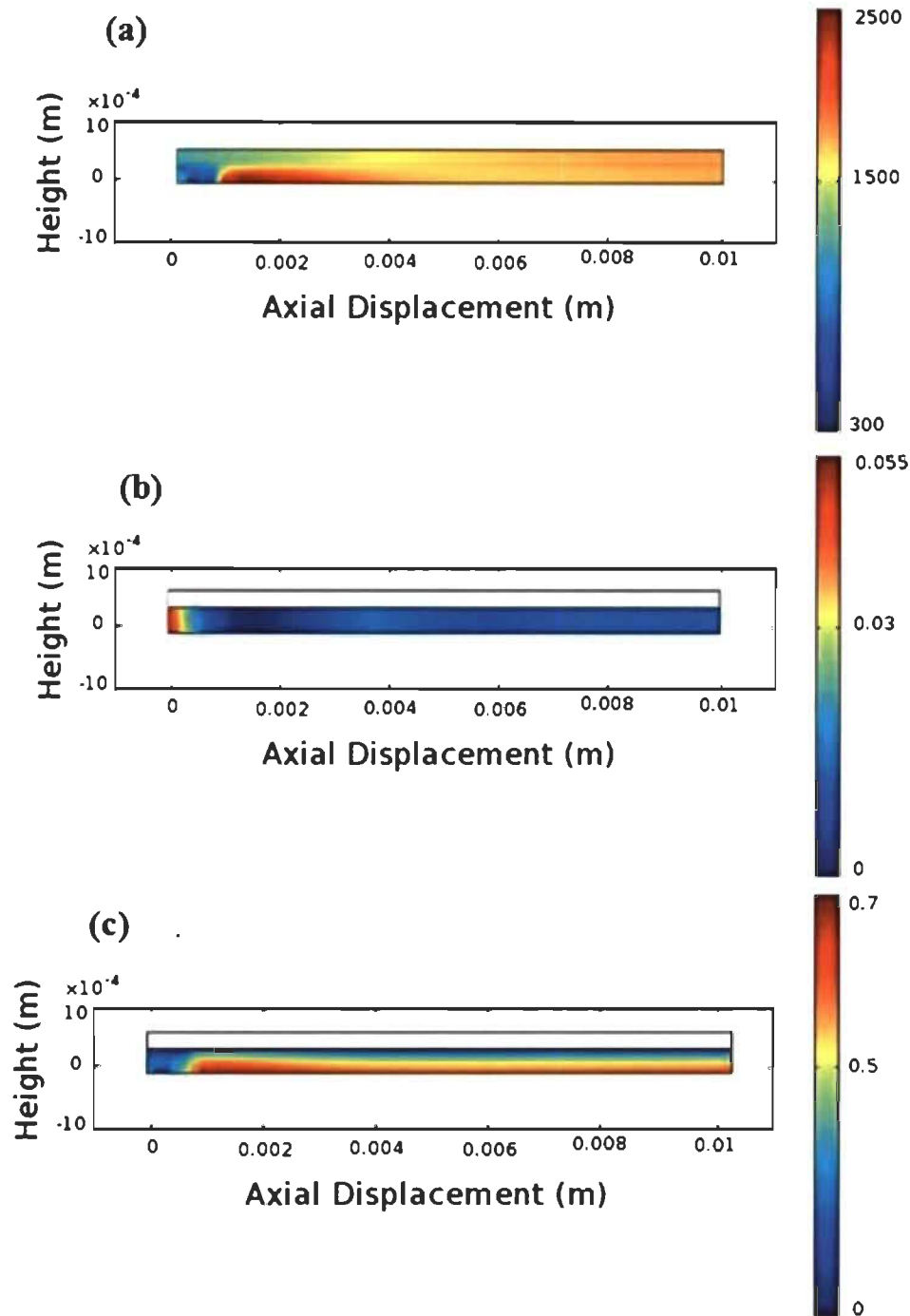


Fig. 4. Contours of temperature for both solid and gas phase (a); methane mass fraction for gas phase (b) axial velocity for gas phase (c), resulting of Duterque's Kineric model computation.

drastically to 800 K and remains constant till the outlet of combustion products.

It is important to recall that, D.G. Vlashos et al. and other authors [2,7] have shown that, in the case of microcombustion with adiabatic walls, the maximum flame temperature at the reaction zone can be significantly higher than the maximum adiabatic flame temperature of combustion without heat recirculation, resulting in the so called "excess enthalpy" or super adiabatic combustion. With the increase of the maximum flame temperature, the flame becomes stronger to resist flame quenching via heat loss and can burn much leaner than the standard flammability limits [20,21].

The temperature is one of the most important parameter to characterize the combustion process. In the context of micro combustion, understanding the flame temperature is necessary for the proper selection of wall material of such devices [18]. The characterization of the combustion in the case of micro combustion has identified three major zones, namely, the pre-heating zone of cold reactants entering, the combustion zone and the post combustion zone [7,22]. In the case of our study, these three zones are observed in the case of Mantel and Duterque models simulations.

The effect of reduced chemical kinetics mechanism on the temperature leads to an overestimation of combustion temperature

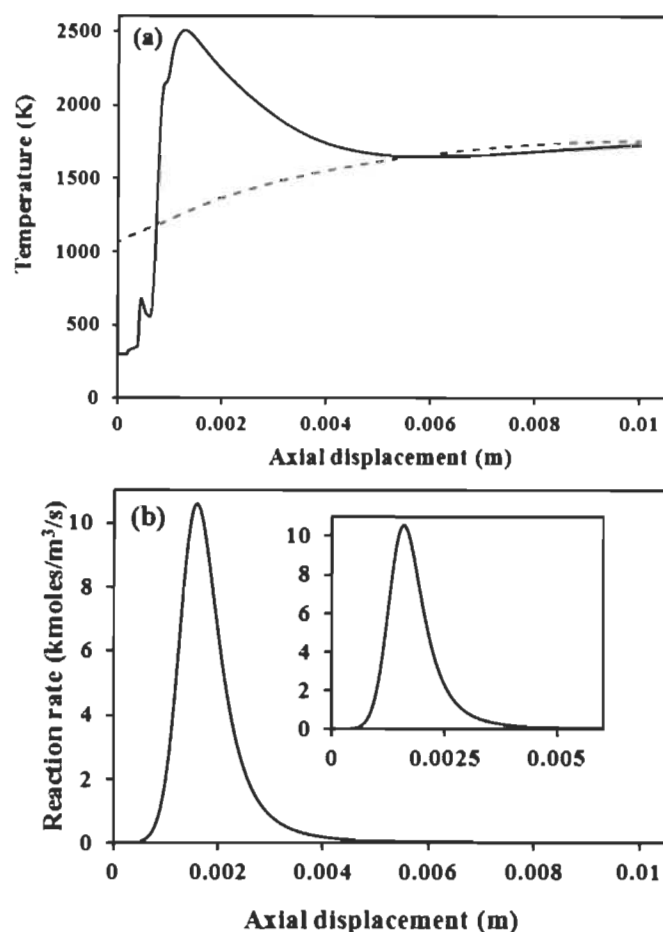


Fig. 5. Temperature profiles along the fluid centerline (solid-line) and wall (dot-line) (a) and reaction rate profile along the fluid centerline (b) resulting of Duterrque's Kinetic model computation.

which is found throughout the literature where the reduced models were used, but does not have the similar impact to the combustion products temperature.

3.4. Effects of one step chemical kinetic mechanism on the wall temperature

In order to understand the effects of one step chemical kinetic mechanism on the walls temperature, the wall temperature profile was analyzed as illustrated by Figs. 3–7. At the beginning of the simulations, for each model, Mantel's, Duterrque's or the so called Arrhenius models, the walls were preheated respectively to 1200 K, 1400 K and 1000 K to favor the ignition of pre mixture. Once the combustion arises, the energy released during the reaction are shared between the flue gases and the walls as recirculation heat [22]. The outlet walls at the equilibrium are supposed to reach the flue gases temperature, while at the inlet, the walls are simultaneously cooled by the cold entrance mixture, and heated by the heat released during the combustion. This recirculation is crucial for auto ignition of the cold entrance mixture, thus for the stability of the micro flame.

Fig. 3(a) shows the evolution of the temperature of the walls using the Mantel's model. The steady state temperature of the micro reactor walls reaches 850 K at the entrance, evolves along the walls to exit at 1400 K. It should be noted that the flow area and the walls have initially been preheated to 1200 K, to allow the flame to

develop. The steady state temperature here stands below that of the reactor mixture. As explained in the above paragraph, this behavior may be due to the conjugated effects of: firstly the cooling of the feed at the entrance, secondly the fact that the combustion arises early and thirdly the pronounced decreasing temperature of the flow along the center line, because of the thin reaction zone.

Fig. 5(a) describes the evolution of the walls temperature of the micro reactor with Duterrque model, the temperature at the reactor inlet is 1050 K and undergoes a significant change at the mixture ignition and then reaches a maximum of 1700 K at half the path of the fluid to the reactor outlet. For this simulation the initial temperature for both the gas phase and solid walls was 1400 K, so that at this temperature the flame could be developed and stabilized. Here the reaction thickness is broadened, the temperature of the mixture remains high till the reactor outlet, the flue gases have quite the same temperature as the outlet walls, while due to the high combustion temperature the inlet walls is heated.

Fig. 7(a) shows the change in the wall temperature in the simulations with the so called Arrhenius model, the walls temperature is 800 K and remains constant without any noticeable change despite the increased in the temperature of the reaction zone. The initial temperature of both the gas flow area and solid walls were set at 1000 K, for the reason as above. It is important to note that for these runs, the initial temperature has been amended several times to see if the behavior of the flame would be different. These temperature changes have caused a lack of convergence or sometimes a failure of the simulations. Here the heat released during the reaction is not sufficient to heat the walls; the constant profile of walls temperature obtained is due to the preheating and to the little amount of energy produced by the flame spot.

The walls temperature is an important parameter in the analysis of the operation of a micro reactor, as it plays a vital and competing role for the preheating and the stabilization of the flame. The wall itself has a dual role in the further heat transfer inside the micro reactor. On one hand it is the heat transfer path of the post combustion zone to that of the cold preheating of reactants avoiding the use of a pre-heating system, on the other hand, it contributes to heat exchange with the outside environment for non adiabatic operations [15,22]. No feature has been observed in the temperature profile that shows the impact of a comprehensive chemical kinetic reaction; however we can say that the chemical kinetics sets the initial temperature useful for the simulations, allowing the onset of the ignition flame. In the J. Li et al. study [18], it was set at 1600 K, while in that done by D. G. Norton and D. G. Vlachos [7] it was 1000 K, and for the three simulated models respectively Mantel, Duterrque and the so called Arrhenius, it varies respectively from 1200 K, 1400 K–1000 K.

4. Conclusion

The temperature and the structure of a flame are important parameters for characterizing a combustion process, especially in the context of micro combustion as a mastering tool for the flame temperature, its location and the judicious choice of material of the walls of a micro reactor. This numerical study of a premixed methane-air flame was carried out to analyze and compare the impact of a comprehensive chemical kinetic equation following Mantel, Duterrque and so called Arrhenius models. The micro structure of the flame, the temperature of reactant and the temperature of the walls were analyzed. It appears from this study that the overall one step chemical kinetics equation has an impact on the shape of the micro flame, as seen from the rounded, elongated and convex flames, using Mantel and Duterrque models while the flame obtained by the so called Arrhenius model presented a very hot illuminated spot. Also it should be noted that the chemical

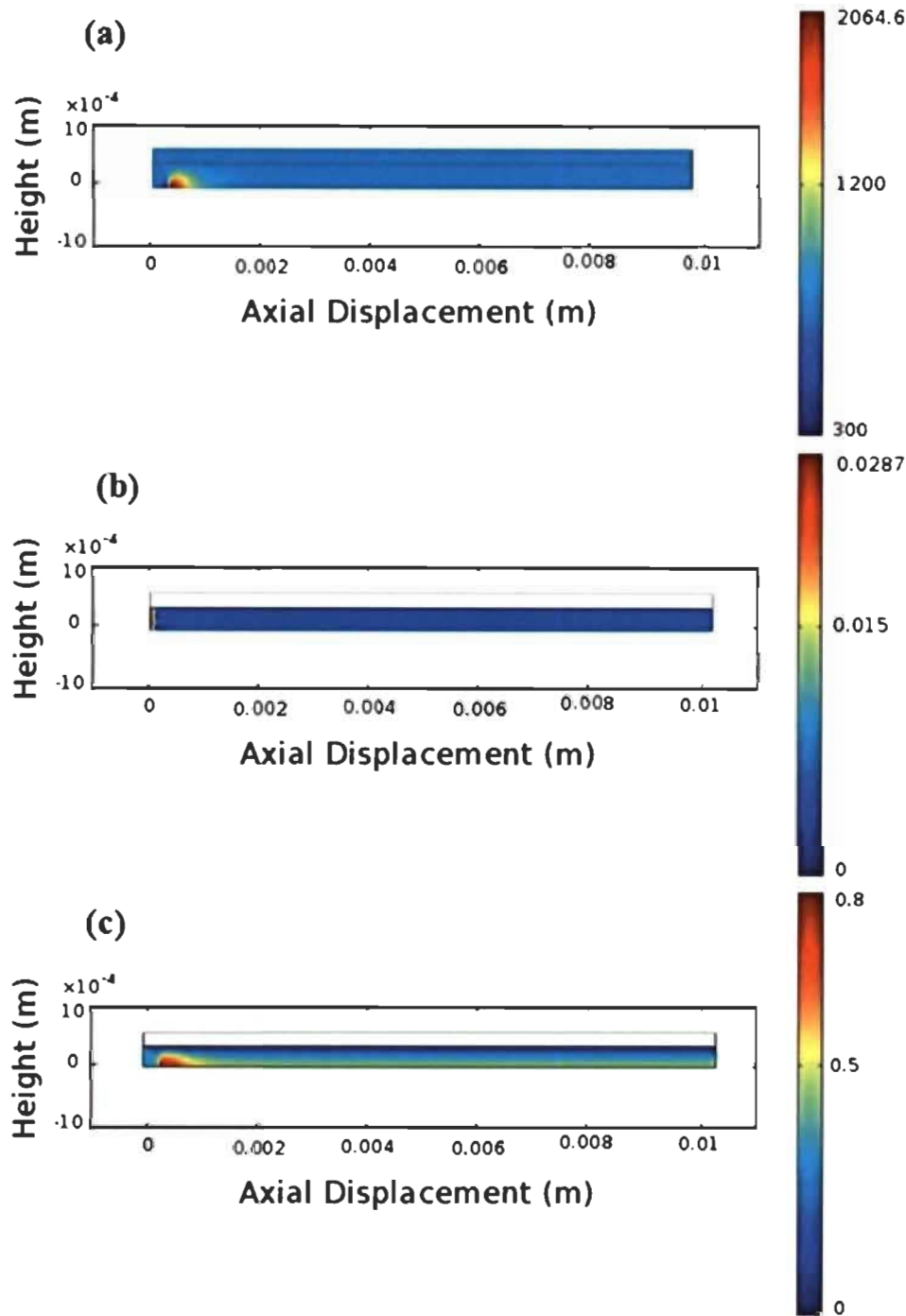


Fig. 6. Contours of temperature for both solid and gas phase (a); methane mass fraction for gas phase (b) axial velocity for gas phase (c), resulting of the so called Arrhenius's Kinetic model computation.

kinetic Duterrque model causes a broadening of the reaction zone increasing the risk of a blowout with a thickness greater than 0.3 mm. As in the case of several studies where reduced kinetics were used, the combustion temperature of the different flames obtained were overestimated, as expected. However, it may be noted in the case of Duterrque's model the burning temperature (around 2500 K) exceeded by far the flame adiabatic temperature with a delay in the ignition of the mixture, as a result of an accumulation of the cold mixture in the inlet reactor. No particularity was noticed on the walls temperature profile. However the

chemical kinetics plays an important role in determining the initial temperature to be chosen for the simulation of micro flames.

Even if a simplified one step overall chemical kinetic equation is associated with several simplifications, the results presented in this paper show some trends, which, within their accuracy provide an understanding and a mastering tool of the combustion phenomena in micro combustors. The prediction of the flame obtained with the model of Mantel is consistent and is in fair agreement with the results presented in the literature and can be easily used for a first calculation.

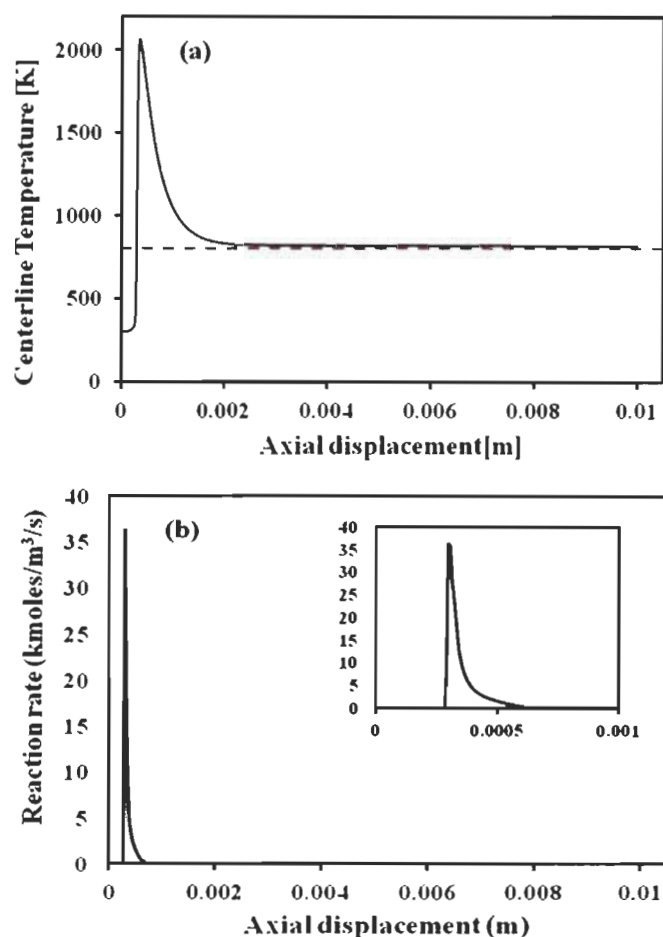


Fig. 7. Temperature profiles along the fluid centerline (solid-line) and wall (dot-line) (a) and reaction rate profile along the fluid centerline (b) resulting of the so called Arrhenius's Kinetic model computation.

Acknowledgements

This work was partially supported by University of Quebec at Trois-Rivières by providing a Ph.D scholarship to O.T. Soso Mayi. The authors are thankful to Laurent Bekale for their help in the discussion.

Nomenclature

R_j	reaction rate of j species (mol/m ³ /s)
k_f	reaction rate constant (1/s)
A	pre-exponential factor (consistent unit)
E_a	activation energy (J/mol)
R_g	universal gas constant (J/mol/K)
T	temperature (K)
C	molar concentration (mol/m ³)
a, b	concentration exponent
k	thermal conductivity (W/mK)
C_p	specific heat (J/kgK)
M_n	molar mass (kg/mol)
p	pressure (Pa)
H_{sr}	enthalpy of formation (J/mol)
$D_{j,k}$	multi component Maxwell–Stefan diffusivity (m ² /s)

Greek letters

ρ	density (kg/m ³)
μ	dynamic viscosity (Pa.s)
ϕ	equivalence ratio
τ	nominal residence time (s)

Subscripts

j	Species
-----	---------

References

- [1] D.C. Walther, J. Ahn, Advances and challenges in the development of power-generation systems at small scales, *Prog. Energy Combust. Sci.* 37 (5) (September 2011) 583–610.
- [2] Y. Ju, K. Maruta, Microscale combustion: technology development and fundamental research, *Prog. Energy Combust. Sci.* 37 (2011) 669–715.
- [3] S.K. Chou, W.M. Yang, K.J. Chua, J. Li, K.L. Zhang, Development of micro power generators - a review, *Appl. Energy* 88 (2011) 1–16.
- [4] K. Maruta, Micro and mesoscale combustion, *Proc. Combust. Inst.* 33 (1) (2011) 125–150.
- [5] K.T. Kim, D.H. Lee, S. Kwon, Effects of thermal and chemical surface-flame interaction on flame quenching, *Combust. Flame* 146 (2006) 19–28.
- [6] C.K. Westbrook, F.L. Dryer, Simplified reaction mechanisms for the oxidation of hydrocarbon fuels in flames, *Combust. Sci. Technol.* 27 (1981) 31–43.
- [7] D.G. Norton, D.G. Vlachos, Combustion characteristics and flame stability at the microscale: a CFD study of premixed methane/air mixtures, *Chem. Eng. Sci.* 58 (2003) 4871–4882.
- [8] N. Kaisare, D. Vlachos, Extending the region of stable homogeneous micro-combustion through forced unsteady operation, *Proc. Combust. Inst.* 31 (2007) 3293–3300.
- [9] J. Duterque, R. Borghi, H. Tichtinsky, Study of quasi-global schemes for hydrocarbon combustion, *Combust. Sci. Technol.* 26 (1981) 1–15.
- [10] R. Ennetta, M. Hamdi, R. Said, Comparison of different chemical kinetic mechanisms of methane combustion in an internal combustion engine configuration, *Therm. Sci.* 12 (2008) 43–51.
- [11] T. Mantel, F. Egolopoulos, C. Bowman, A New Methodology to Determine Kinetic Parameters for One- and Two-step Chemical Models, SEE N 97-17992 01-34, in: Renault Vehicles Industrials, Studying Turbulence Using Numerical Simulation Databases, 1996, pp. 149–166.
- [12] E. Fernandez-Tarrazo, A.L. Sánchez, A. Linan, F.A. Williams, A simple one-step chemistry model for partially premixed hydrocarbon combustion, *Combust. Flame* 147 (2006) 32–38.
- [13] Stockholm, Sweden, C. Multiphysics, “4.2 a User Guide,” 2008.
- [14] F.A. Williams, *Combustion Theory: the Fundamental Theory of Chemical Reacting Flow Systems*, Addison-Wesley, 1965.
- [15] D.G. Norton, D.G. Vlachos, A CFD study of propane/air microflame stability, *Combust. Flame* 138 (2004) 97–107.
- [16] S. Deshmukh, D. Vlachos, A reduced mechanism for methane and one-step rate expressions for fuel-lean catalytic combustion of small alkanes on noble metals, *Combust. Flame* 149 (2007) 366–383.
- [17] A. Gutkowski, Numerical analysis of effect of ignition methods on flame behavior during passing through a sudden contraction near the quenching conditions, *Appl. Therm. Eng.* 54 (1) (14 May 2013) 202–211.
- [18] J. Li, S.K. Chou, W.M. Yang, Z.W. Li, A numerical study on premixed micro-combustion of CH₄-air mixture: effects of combustor size, geometry and boundary conditions on flame temperature, *Chem. Eng. J.* 150 (2009) 213–222.
- [19] C. Hackert, J. Elzey, O. Ezekoye, Effects of thermal boundary conditions on flame shape and quenching in ducts, *Combust. Flame* 112 (1998) 73–84.
- [20] P.D. Ronney, Analysis of non-adiabatic heat-recirculating combustors, *Combust. Flame* 135 (2003) 421–439.
- [21] Y. Ju, C. Choi, An analysis of sub-limit flame dynamics using opposite propagating flames in mesoscale channels, *Combust. Flame* 133 (2003) 483–493.
- [22] T.Y. Leach, C.P. Cadou, G.S. Jackson, Effect of structural conduction and heat loss on combustion in micro-channels, *Combust. Theory Model.* 10 (2006) 85–103.
- [23] S. Karagiannidis, J. Mantzaras, G. Jackson, K. Boulouchos, Hetero-/homogeneous combustion and stability maps in methane-fueled catalytic micro-reactors, *Proc. Combust. Inst.* 31 (2007) 3309–3317.
- [24] J. Hua, M. Wu, K. Kumar, Numerical simulation of the combustion of hydrogen-air mixture in micro-scaled chambers. Part I: fundamental study, *Chem. Eng. Sci.* 60 (2005) 3497–3505.
- [25] J. Li, S.K. Chou, G. Huang, W.M. Yang, Z.W. Li, Study on premixed combustion in cylindrical micro combustors: transient flame behavior and wall heat flux, *Exp. Therm. Fluid Sci.* 33 (2009) 764–773.
- [26] N.I. Kim, K. Maruta, A numerical study on propagation of premixed flames in small tubes, *Combust. Flame* 146 (2006) 283–301.
- [27] V. Zamashchikov, E. Tikhomolov, Sub-critical stable hydrogen-air premixed laminar flames in micro gaps, *Int. J. Hydrogen Energy* 36 (2011) 8583–8594.
- [28] N.S. Kaisare, D.G. Vlachos, Optimal reactor dimensions for homogeneous combustion in small channels, *Catal. Today* 120 (2007) 96–106.

NUMERICAL EVALUATION OF POLLUTANTS EMISSIONS IN PREMIXED
METHANE/AIR MICRO FLAME

O. T. Sosso Mayi ^{ae}, M. B Obounou Akong^c, J. Tonyi Agbébavi^{b*}

^aDepartment of Industrial Engineering, University of Quebec at Trois-Rivières,

^bDepartment of Chemical Engineering, University of Quebec at Trois-Rivières
C.P. 500, Trois-Rivières(Québec) G9A 5H7

^cDepartment of Physics and Energy, University of Yaoundé I, Cameroon,
BP 337 Yaoundé, Cameroun

^eDepartment of Electrical Engineering, ENSET of Douala University, Cameroon.
BP 1872 Douala, Cameroun

*Corresponding author: Professor James Agbebavi

Email: James-Tonyi.Agbebavi@uqtr.ca Telephone Nr Office: 819 376 5011 Ext 3916

Abstract

Combustion is a process used in the production of MPG for portable energy. A key issue in combustion research is the reduction of harmful emissions. A premixed methane/air micro flame was simulated with a simplified chemical kinetics with four equations of Jones and Lindstedt . In addition, the chemical kinetic mechanism with three equations describing the formation of thermal NO was integrated in Comsol 4.2a code, all that equations describing the production process and disappearance of the major chemical species. Simulations in stoichiometric and lean conditions with equivalent ratio ϕ equal to 0.9 and 0.7 show that, the simulation with the Jones and Lindstedt model provides a stable flame with the temperatures of the order of that obtained with a detailed chemical kinetic mechanism as reported in the literature. We also note that the richness of the mixture influences the position of the microflame. It is formed at the entrance of the microreactor when $\phi = 1$ and $\phi = 0.9$, but it is deflected to the center of the reactor with $\phi = 0.7$. Production of carbon dioxide (CO_2) varies with the richness of the mixture. It is in their maximum with $\phi = 1$ and in the order of 250 ppm, this value remains smaller than the required threshold for breathable air. Carbon monoxide (CO) is not found in the products of combustion due to the high temperatures at the outlet of the microreactor in the three cases. Nitric oxide (NO) is found in small amounts in the products of combustion and a concentration of less than 1ppm was predicted. However, we note that its production is maximal for a lean mixture with an equivalent ratio of 0.7, the EINO in this case is constant relative to temperatures in the micro reactor. It may therefore worry about NO production more important to a lean mixture with $\phi < 0.7$.

Key words: Micro reactor, simplified chemical kinetic, pollutants

1. Introduction

Micro and nano systems for energy production (MNPG) based on the combustion of hydrocarbons are reliable alternative for the power supply of equipments such as, laptops, cell phones, robots, micro rockets, mini planes, drones which could be powered by microreactors [1-3]. Combustion is a process used in the MNPG to produce portable energy. However, as their macro counterpart systems the combustion process in MNPG could produce pollutants such as the nitrogen monoxide (NO_x) [4, 5] that is known to be responsible for many health hazards and may represent a significant threat to the environment [6, 7].

For energy generation, a complete oxidation of the fuel to CO_2 and H_2O with a minimum amount of any byproducts is desired; unfortunately that never happens due to the combustion chemistry process which generates many species responsible of environment pollution and human diseases. The rate of fuel supplying MNPG devices is fundamentally less important compared to the quantity of fuel used for larger power devices, since the small size of the devices being considered. It is then easy to infer that, pollutants emissions produced by MNPG are highly weak and without considerable effects on environment. Several researchers concluded that, their CO_2 and H_2O emissions and heat release would be comparable to that of the human being for the mesoscale size and would be significantly less for the microscale ones[8]

Extensive research has been carried out on homogeneous combustion of CH_4 and pollutants emissions in macro combustion [9-13]. In micro combustion few studies are reported, Kim *et al.*[14], experimentally study the pollutants emission of small Swiss roll combustor as heaters; they concluded that as a combustor became smaller NO_x emission

decreased, while the emission of CO increased. Efinger, M. *et al.* [15], have reported the characterization and reduction of pollutant emissions from a landfill and digester gas fired microturbine generator. Nascimento, M. A. R. *et al* have proposed an experimental evaluation and a comparison of the performance and emissions of a regenerative gas microturbine using biodiesel from various sources as fuel [16, 17]. However the study of the exhaust gas in micro combustion is still weakly investigated in order to estimate the concentrations and describe the formation of different species released.

This study was motivated by the desire to evaluate the pollutant emissions of MNPG since their main objective is to replace the batteries in the daily supply of electrical devices. A pre mixed methane flame in a plug flow micro reactor model was investigated. The numerical calculations adopted a coupled set of elliptic equations, with a simplified four steps chemical kinetic mechanism model and thermal NO mechanism with three equations, instead of detailed chemistry in order to reduce the computational time. The major pollutants have been evaluated, such as, carbon dioxide, carbon monoxide, nitrogen oxides simultaneously by testing three equivalence ratios ϕ , 0.7, 0.9 or 1.

This work shows that the simplified chemical kinetic mechanism with four global equations can well predict the evolution of major chemical species emissions. The emission of carbon dioxide reaches the concentration of 250 ppm, less than the acceptable threshold limit of 450 ppm for a breathable air. In addition, there is no presence of carbon monoxide due to the high reaction temperatures, while the concentration of thermal NO varies with the equivalent ratios. Because of its tendency to increase, the later needs to be monitored at the lean conditions.

2. Method

Premixed mixture methane/air feeds a tubular 2D parallel plate, whose dimensions are: 600 μm for the gap and a length of 10000 μm , as shown in **Fig. 1** (a), with alumina walls of 200 μm thickness. The input velocity of the reactants is 0.5 m/s. All calculations were made with COMSOL 4.2a software [18]. The origin is fixed at the center of the inlet of the micro reactor, x depicts the axial or downstream distance, while y represents the vertical distance or distance from the centerline of the micro reactor. The assumption is that the component of the swirling velocity is zero, allowing only a symmetrical study by the center of the micro reactor. Only half of the micro reactor will be considered in the calculations, thereby reducing the computational time. Moreover, we consider that there is no Dufour effects[19], no gas radiation [20, 21]; no work done by viscous forces and pressure, and steady state conditions are prescribed.

The study of the reactive flow is done in two steps, the first using the reaction engineering module, which sets the selected chemical kinetics mechanism and the analysis of combustion in a reactor model as a plug flow model. It also evaluates all thermodynamic and transport data to achieve combustion in a practical reactor as shown in **Fig. 1**. The second step is the multi-physical coupling of reaction engineering module with, the transport and concentrated species, heat transfer and laminar flow modules to establish the species transport, heat transfer in gas phase and solid walls, and the flow regime.

2.1. *Reaction Engineering module*

Reaction Engineering Module allows the study of chemical kinetics in different reactor models and sets up the chemical kinetics mechanism which was defined in advance. It calculates the thermodynamic and transport parameters through the chemical and kinetic equations (1), (2). In our study, we have chosen a four step reactions models of Jones and Lindstedt [22] and five species namely hydrocarbon, oxygen, carbon monoxide, carbon dioxide and water. Its mechanism is reported in the **table 1**.

The source term is given by reaction rate equation for each chemical equation:

$$- R_j = k^f \prod_{i=1}^Q c_i^{\nu_i} \quad (1)$$

$$- k^f = AT^n \exp \left(-\frac{E_a}{R_g T} \right) \quad (2)$$

In the equations (1), (2), R_j (mol/m³/s) are the reaction rate of j species, k^f (1/s) is reaction rate constant, c (mol/m³) is the molar concentration, ν is the concentration exponent. A (consistent unit) is the pre-exponential factor, E_a (J/mol) is the activation energy, R_g (8.314 J/mol/K) is the universal gas constant, T (K) is the temperature. The Arrhenius parameters, ν , A , n , E_a are given by [23], their values are defined in the **table 1**.

2.2. *NO_x mechanism*

Due to their immense practical relevance, NO_x from various types of flames and combustion devices have been extensively investigated [24-26]. Many researchers in macro combustion field have focused on the development of appropriate NO_x

mechanisms for more detailed prediction and investigation of NO_x emissions from flames. Three mechanisms are generally reported in the literature, namely thermal, fuel and prompt NO mechanisms [26, 27]. The adopted reaction scheme to describe NO_x contribution in the combustion reactions was chosen in the GRI 3.0 mechanism [28]. To describe NO formation, prompt and thermal mechanisms were used. The former includes the mechanism through N₂O, in addition to Fenimore mechanism. The reactions leading to NO₂ formation are also included [29].

a) Thermal NO (Zeldovich) is the one obtained by the following three mechanisms.



The thermal NO is the result of the oxidation of molecular nitrogen in the post-flame region. Reaction (11) is the step limiting of this mechanism. This reaction has high activation energy. It will be fast at high temperatures and will take place in the flame front. That is why it is predominant in the combustion chamber at high temperature (> 1500 K), its formation is related to the concentration of oxygen and duration of flow of air in the reaction zone.

b) Fuel mechanism (N₂O) is the summation of production through the following three reactions in the full mechanism calculation.

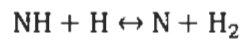


The NO fuel mechanism is due to the oxidation of organic nitrogen in the fuel components and oxygen at temperatures higher than 1300 K [30]. The carbon-nitrogen bond has a much lower binding energy than in N₂ link. This type of training will be easier and faster at "low temperature" than the mechanism of thermal NO.

- c) N₂O mechanism is the summation of production through the following five reactions in the full mechanism calculation.



- d) Prompt NO (Fenimore) mechanism is the one obtained by the full mechanism calculation minus the summation of the above three mechanisms.



(18)



Prompt NO is formed by the reaction of the free oxygen in excess air. It is produced rapidly in the flame zone, long before NO is formed by the thermal mechanism[26]. The general scheme is such that the species HCN and CN are first formed by the hydrocarbon radicals. Unlike the mechanism of thermal-NO, prompt NO occurred in rich medium at relatively low temperatures (> 1000 K) [26].

Using these classifications the portion of each mechanism can be evaluated in the numerical calculation. This is one advantage of numerical study over experimental study because the experimental result only showed global NO emission[27]. Nevertheless, in the frame of our study, only the thermal NO mechanism will be evaluated. Our study will focus on the thermal NO_x emission because fuel NO mechanism has a low probability to occur when the temperature is high, which is our case in the premixed methane micro flame studied. On the other hand, prompt NO is favour in the rich condition whereas in the case of MNPG the stable combustion is generally in the lean condition. Further, C.E. Lee., *et al* showed that thermal NO route was dominant at a low velocity gradient and the prompt NO route was dominant at a high velocity gradient[25], whereas N.S. Kaisare and D.G. Vlachos demonstrated that, methane micro flames are stable with velocity in the range of 0.35-0.8 m/s [31]. Reaction rate parameters for thermal NO mechanism are reported in **table 2**.

2.3. Numerical Model

- Since the flow regime is laminar with one Reynolds number less than 2000 ($Re = 74.83$), we choose the Laminar flow module to describe the flow of fluid along the axial displacement of the reactor. It is defined by the equations of continuity and momentum (20, 21).

- The Heat transfer module in the fluid expresses the heat transfer through the fluid along the axial displacement of the reactor and walls. It is defined by the equations of energy (22, 23, 26).

- Transport and Concentrated species Module, describes the transport of species in determining the transport coefficients. It is defined by the equation of conservation of species transport (24, 25, 27, 28).

The 2D governing equations are defined as follows:

$$\nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (20)$$

$$\rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \nabla \cdot \left[p \mathbf{I} + \rho \left(\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T - \frac{2}{3} \mu (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{I} \right) \right] + \mathbf{F} \quad (21)$$

$$\rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad (22)$$

$$\nabla \cdot (k_w \nabla T) = 0 \quad (23)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{j}_j + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) w_j = R_j \quad (24)$$

$$\mathbf{j}_j = - \left(\rho D_j^m \nabla w_j + \rho w_i D_j^m \frac{\nabla M_n}{M_n} + D_j^T \frac{\nabla T}{T} \right) \quad (25)$$

$$Q = -H_{gr} R_j \quad (26)$$

$$D_j^m = \frac{1 - w_i}{\sum_{k \neq i} \frac{x_k}{D_{jk}}} \quad (27)$$

$$M_n = \left(\sum_i \frac{w_i}{M_i} \right)^{-1} \quad (28)$$

$$\rho = \frac{p}{RT} M_n \quad (29)$$

In these equations, ρ (kg/m^3) is the density of the reactants, μ the dynamic viscosity (Pa.s) , k (W/mK) the thermal conductivity of the mixture, k_w (W/mK) the thermal

conductivity of the wall, C_p (J/kgK) the specific heat, M_j (kg/mol) is the molar mass of each species, M_n (kg/mol) is the molar mass of the mixture, p (Pa) is the pressure. H_{sr} (J/mol) is the enthalpy of formation of species, the mass fraction w_i and D_{jk} (m²/s) is the multi component Maxwell-Stefan diffusivity.

The 2D governing equations are discretized by the finite element method and solved by Comsol 4.2a[18]. The equations are solved implicitly with a separate 2D solver using a method of relaxation, while computing the first equations of momentum and the continuity, followed by an update of the pressure and mass flow, energy and species transport equations. The iterations are controlled and monitored until a convergent solution is obtained. The convergence criteria for residuals are 1×10^{-3} for all equations. The gas density is calculated using the ideal gas law. The gas viscosity, specific heat and thermal conductivity are based on the average of the mass fraction of all species.

The boundary conditions are such that we have, at the inlet a linear velocity of $u_0 = 0.5$ m/s, the choice of this velocity being justified by the fact that it is close to the combustion speed of methane (0.40 m/s), in addition it is one of the parameters of the flame stability in a micro reactor [10]. The uniform inlet temperature is 300 K at the center of the micro reactor, the mass fraction $w_{CH_4} = 0.055$, the equivalence ratio of the fuel change with the case studied between 1, 0.9, 0.7, from these conditions, the oxidiser will be raised. The choice of composition of the mixture is inferred by the fact that quenching distance for a stoichiometric composition is lower than that of lean mixtures [32, 33], no-slip boundary condition is imposed at the solid-fluid interface $u = 0$ m/s, the heat flux is calculated from Fourier's law, the continuity of the temperature and the heat flux create the link between the gas and solid phase. In our simulations, a non-regular

mesh is used with more nodes concentrated at the inlet reactor, around the reaction zone. The computations were performed with 4320 nodes (**Fig. 1(b)**). A high temperature (1800 K) is imposed on the entire computational domain (both gases and solid) as an initial guess for the numerical iteration. It is important to use a temperature high enough to ‘ignite’ the mixture. Lower temperature may fail ignition for some cases. The physical and boundary conditions summarized in this section are applied to all cases in this study.

3. Results and discussion

3.1 *Structure of microflame*

The study of the pollutants emission from a rectangular micro reactor was dictated by the fact that this reactor geometry is one of the oldest and simpler MPG studied by the researchers [20, 34, 35]. Furthermore a series of MEMS-based power generators with rectangular configuration have been prototyped [36], so its probability to be used in a real micro reactor is high than other. A premixed methane/air micro flame was simulated using a simplified chemical kinetics mechanism with four overall equations in the cases of stoichiometric combustion ($\phi = 1$) and lean combustion with equivalence ratio $\phi = 0.9$ and $\phi = 0.7$. The mechanism of thermal NO consisting of three equations has been associated with Jones and Lindstedt mechanism. **Figure 2 ((a), (b) and (c))**, presents the results of simulations of different flames obtained under these conditions. We observe that the simulated flames are anchored in the entrance of microreactor. They all have the same convex shape and describe three distinct zones: the preheating zone is established on a thin distance, the reaction zone with two subzones, ignition and inflammation zone as described by Leach *et al.* [37] varies according to different parameters and which enables recirculation of the heat required for preheating the cold reactant. Finally the last

zone is the rest of the micro reactor which allows the evacuation of the combustion products. However it should be noted that the analysis of the flame structure shows that the richness of the mixture influences the position of the micro flame. In the stoichiometric operation, the fluid that enters at the room temperature is preheated by the action of the walls through the heat recirculation, the premixture is ignited and the flame is formed almost at the entrance of micro reactor. In lean conditions the flame is deflected towards the middle of the micro reactor. With a equivalence ratio equal to 0.9, the flame is still anchored at the entrance of the micro reactor, while when the richness of the mixture is 0.7, the flame location moves significantly downstream, creating a cold accumulating fluid at the entrance of the microreactor. The change of the flame location has already reported in several articles and has been justified by the action of the input velocity of the reactants. It is well known that, when the input velocity of the reactants is greater than the combustion speed, the flame is blown and shaped much further from the entry of the micro reactor, but if the velocity of the reactants is less than that of combustion, the flame shape is very close to the entry of the micro reactor. With the results obtained we can highlight that, with the change of equivalence ratio to stoichiometric at lean conditions in the same conditions, the flames are moved. We can explain it by the fact that, the flame speed is function of ignition temperature, which means that, if the ignition temperature changes, consequently the flame speed will change and somewhere the flame location would be affected.

Figure 3 (a) shows the profile of the temperature at the center of the microreactor under the three conditions mentioned above ($0.7 \leq \phi \leq 1$), in the case of the stoichiometric mixture, the fluid enters at 300K and reaches the ignition temperature at $x = 0.0005$ m,

when $x = 0.00085$ m the combustion temperature of 2086 K is reached, this temperature is less than the adiabatic temperature equal to 2240 K, the temperature begins to drop to $x = 0.00125$ m to become constant at $x = 0.002$ m and maintain throughout the rest of the micro reactor at 1800 K. Similarly, in the lean conditions, the temperature profile shows that for the case of $\phi = 0.9$, the temperature combustion is equal to 2013 K while the adiabatic equilibrium temperature is closed to 2140 K. However, in the case of $\phi = 0.7$, the ignition temperature of 1250 K is reached at $x = 0.0015$ m and the combustion temperature get at 1843 K and closed of adiabatic temperature is obtained at $x = 0.00175$ m, it decreases to 1550 K at $x = 0.0025$ m, and remains constant along the remainder of the micro reactor. The micro flame temperatures simulated for the both first case are underestimated. That underestimation can be explained by the fact that the heat produced is distributed to the walls and combustion products, in addition the cracking process of chemical species is endothermic. Several researchers have shown that the used of one step chemical kinetic mechanism lead to overestimated microcombustion temperature[20, 35] and justified it by the heat sinks action of microreactor walls on the one hand, on the other hand by the fact that the combustion in this case is particularly abrupt. While the Jones and Lindstedt mechanism is the reduced chemical kinetic mechanism, the number of chemical species involved is much more numerous than those in one step chemical kinetic model, about ten species CH_4 , O_2 , CO , CO_2 , H_2O , N_2 , O , N , NO , OH are generated or reduced. The magnitude of the temperature obtained is similar to that obtained with microflames simulated using a detailed chemical kinetics with 16 species and 25 reversible reactions developed by Smooke and Giovangigli (~1800 K) as reported in the literature [33]. Somewhere as Jones and Lindstedt mechanism described the

chemical species dissociation, in comparison of the overall one step kinetic mechanism, it's logical that the combustion temperatures obtained are less than the magnitude of adiabatic temperature. Nevertheless in the case of equivalence ratio equal to 0.7, the temperature is closed to adiabatic temperature, we think that the accumulation of reactant at the entrance of the reactor allows the reaction of an important quantity of mixture and then a production of much heat.

Also it is possible in these cases to determine the thickness of the simulated flames proposed by Sung and Law formula [38]:

$$\delta_r = \frac{T_f - T_0}{\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)_{max}}$$

In the case of a stoichiometric mixture $\delta_r = 3,6 \text{ mm}$, in the other two conditions , $\delta_r = 3,67 \text{ mm}$ and $\delta_r = 3.9 \text{ mm}$ respectively with $\phi = 0.9$ and $\phi = 0.7$. These values of the thickness of the flame is greater than seven to nine times that of the thickness of a free flame methane jet estimated to 0.42 mm [1]. These thicknesses show the effect of the walls on the micro combustion process, which permit the preheating of cold entrance mixture and then the broadening of reaction zone.

Figure 3 (b) shows the evolution of the reaction rate , we can realize that the amount of fuel that reacts in the case of a stoichiometric mixture is of 18 kmol/(m³.s) and 17 kmol/(m³.s) in the case of a lean mixture when $\phi = 0.9$. It is therefore understandable why the temperatures obtained in both cases are high and consequently think that all fuel has reacted. In the case of equivalence ratio equal to $\phi = 0.7$, the level of the reaction rate is much lower and is equal to 12 kmole/(m³.s) , which may suggest that all the fuel is

not burned, which is explained by the fact that a larger amount of cold reagent enters the reaction zone without any time to benefit from the effect of preheating for the heat recirculated through the inlet walls.

The results clearly show that the reduced Jones and Lindstedt chemical kinetics four equations can be used in the case of the simulation of the combustion in the MPG and can reproduce flame speeds, flame thicknesses and species profiles. This leads to the same conclusion as Ennetta *et al.* who showed that this chemical kinetics mechanism can describe flame behaviour within a microreactor with results close to those obtained with detailed chemical kinetics mechanism [37].

3.2. Pollutants production analysis.

Figures 4 (a), (b) and (c) show the profiles of the production and disappearance of major species during combustion in the micro reactor in stoichiometric and lean conditions.

Figure 4 (a) shows that the mass fraction of the oxygen is greatly reduced after the reaction zone and almost disappear in the reactor outlet, while methane disappears soon after combustion. The mass fraction of water and production of carbon dioxide (CO_2 and H_2O) is important and we can distinguish the production of the thermal NO in inset only because its production is low than other species. The curve describing the carbon monoxide (CO) is such that, it is formed in the reaction zone but will disappear shortly after, but will not appear in the flue gases.

In **Figure 4 (b)**, it is possible to establish the same finding as above, the equivalence ratio of the mixture is then 0.9, nevertheless there is the presence of excess oxygen at the

output of the micro reactor and a slight decrease in the production of water and carbon dioxide.

Figure 4 (c) shows the formation of combustion products and the disappearance of the reactants in a lean mixture with a equivalence ratio of 0.7, the accumulation of fluid at the inlet of the micro reactor as explained more above allows us to understand that even if all the fuel burns, there's a strong production of carbon monoxide compared to the first two conditions , in addition, the excess oxygen at the exit of micro reactor is much larger and in the same order as that of water $w_{O_2} = w_{H_2O} = 0.08$. The production of carbon dioxide is smaller than that obtained in the other two conditions. As in a lean and stoichiometric mixture, the production of thermal NO as zoomed on the graph is largely low compared to that of all other species. Special analysis of CO₂, CO and NO representing potentially harmful pollutants for both the environment and for health will be done in the next sections.

3.2.1. Carbon dioxide emission

CO₂ is a gas inevitably present in the combustion products, even if it is a greenhouse gas; CO₂ is produced by both humans and by several other devices. A human being rejects average amount of CO₂ estimated at 0.02 cfm , and in a work environment or housing, air having an amount of 450 ppm is considered safe [39]. Several researchers have previously indicated that the MPG given their low fuel consumption would have a less production of carbon dioxide than the human being. Our study shows that CO₂ is indeed produced, but at a concentration lower than the threshold limit of what is required for a breathable air. **Figure 5** shows the evolution of the production of carbon dioxide as function of the equivalence ratio. It can be observed that the production of CO₂ decreases

with the richness of the mixture. This is explained by the fact that carbon dioxide is a good indication of combustion. An important point to take in account from **figure 5** is that the maximum CO₂ concentration is 253 ppm , 248 ppm and 200 ppm respectively for $\phi = 1$, $\phi = 0.9$ and $\phi = 0.7$. It is therefore possible to infer that the production of CO₂ in the case of MPG is acceptable for breathing and would not constitute a hazard, at least in the case of the reactor model studied. But the hazard also depends on the type of exposure

3.2.2. Carbon monoxide emission

Carbon monoxide is a dangerous gas to health, because it attacks the respiratory system and can even be fatal in low doses. It would require a concentration of less than 1 ppm of CO in air for safe respiration [40]. It is therefore important in the design of a combustion device to be interested by its presence in the combustion products released by such a system. **Figure 5** shows the profile of the carbon monoxide (CO) produced in a rectangular configuration microreactor plug flow model. Here, its presence is due to the dissociation of the chemical species. Once the reactants entered the reactor, the mixture temperature increases, the species begin their transformation, carbon monoxide appears and increases progressively in the same direction as the temperature of the reactants, and to show its maximum when the combustion temperature is reached. D. G. Vlachos et al. noted that in the case of combustion where the walls play an important role, the mixture is converted substantially to CO₂ near the walls after the ignition of the reactants and even at high temperature, only 75% of CO is converted in the main reaction mixture [40]. In the case of the stoichiometric combustion CO concentration reaches about 68 ppm, though it falls slightly to 63 ppm when the equivalent ratio of the reaction mixture is 0.9.

But a very important increase of CO appears when the equivalent ratio is 0.7, till a peak of 148 ppm. This significant change when $\phi = 0.7$ in the concentration of CO in the combustion process is due to the large amount of cold fluid which is found in the reaction zone when the temperature of the reagents develops. In all three cases, the CO disappears completely and is transform in CO₂ when the combustion temperature down to stabilize to the temperature of the flue gas. These temperatures, respectively in the order of 1800 K, 1750 K and 1550 K are still large enough to burn the carbon and explain the lack of CO in the combustion products released by this microreactor model.

It is worth mentioning that one of the characteristics of MPG is to have high flue gas temperatures and more fundamentally they always operate in lean conditions providing a barrier to the presence, even in trace, of carbon monoxide in the combustion products.

3.2.3. Nitric oxide emission

The presence of nitric oxide is evaluated using two parameters, the concentration and the Emission Index of the thermal NO, known as EINO. **Figure 7** represents the profile of NO production along the axis of the microreactor as function of the equivalence ratio. The production is relatively high for $\phi = 0.7$. In the three richness conditions, the NO concentration varies, increases along the reactor, reaches its values 3.6, 4.4 and 11.8 ppm at the burning, respectively for the equivalence ratios of $\phi = 1$, $\phi = 0.9$ and $\phi = 0.7$. Once the temperature drops, the thermal NO also drops drastically to the two thirds of its production. It rises slightly to 0.18 and 0.2 ppm even when the temperature of the combustion products is constant for an equivalence ratio of 1 and 0.9. However in the case of lean condition where $\phi = 0.7$, the increase of the concentration of NO is worrying as it reaches the value of 0.8 ppm, despite a lower flue gas temperature compared to the

cases above. However it's important to highlight that few year before in an experimental study, Nam Il Kim et al. show that NO_x production decreases with equivalence ratio within a Swiss-roll combustor [14], they find NO_x emission was less than about 100 ppm at an equivalence ratio 0.9, and less than 60 ppm at an equivalence ratio 0.7. Their results seem to be contrary of what we find; nevertheless we can explain it by the form of combustor which plays a key role for the emission of burned mixture. In addition, the results give by Nam Il Kim et al. have to be considered as an average of production of prompt, thermal and fuel NO, while in this case only the thermal NO is significant.

The production of thermal NO is also analysed by its emission index (EINO) as calculated by Takeno and Nishioka [41], as:

$$\text{EINO} = \frac{\int_{-L}^L \dot{\omega}_{\text{NO}} w_{\text{NO}} dx}{-\int_{-L}^L \dot{\omega}_{\text{CH}_4} w_{\text{CH}_4} dx}$$

$\dot{\omega}_{\text{NO}}$ is the production rate of NO and $\dot{\omega}_{\text{CH}_4}$ is the consumption rates of methane. w_{NO} and w_{CH_4} respectively represent the molar mass of NO and CH_4 .

In this case of **Figure 7 (b)**, the EINO is a function of the temperature in the microreactor. Cho and Chung show that the EINO index monotonically increases with increasing phi form 0.5 to 1[27], in our study the EINO index was studied in comparison with the temperature evolution. We notice that the EINO index greatly decrease with the increase of the temperature in the both case of equivalence ratio equal to 0.9 and 1, while in the case of equivalence ratio equal to 0.7 the EINO remains quite constant. At low temperature, the production of NO is important in all three cases ($\phi = 1$, $\phi = 0.9$, $\phi = 0.7$) respectively 35%, 65% and 75%. The reaction of excess oxygen in the mixture with the

nitrogen in the presence of the temperature above 1400K is responsible for this increase at very lean mixture. Therefore, it becomes a challenge to find a compromise between operating the MPGs at lean condition and minimizing simultaneously the NO production. This peculiar behavior of EINO index may result the position of the flame, because the NO is almost constant before the flame reach to its high level, once the temperature begin to decrease, the NO production also decrease.

4. Conclusion

The analysis of the production of pollutants from a micro reactor requires the use of chemical kinetics model which can highlight the contribution of combustion products with a high probability of occurrence. For this, the model of Jones and Lindstedt with a simplified chemical kinetics can be used. The simulated flames in stoichiometric and lean conditions ($\phi = 1$, $\phi = 0.9$, $\phi = 0.7$) are convex with a reaction zone extended resulting in a combustion temperature of about 2086 K, 2014 K and 1846 K respectively, depending on the richness of the mixture. The flue gas temperature at the outlet of the reactor remained almost constant and higher, respectively at 1850 K, 1800 K and 1550 K. This study is the first to test the simplified chemical kinetic model with four equations for the simulation of microflame compared to the widely used simplified one step equation. Pollutants such as carbon dioxide (CO_2), carbon monoxide (CO), and nitrogen monoxide (NO) were studied by varying the equivalent ratio. As for unburned fuel, the presence of carbon monoxide cannot be justified given the high level of the temperature of combustion products at the exit of the micro reactor, at least under the conditions studied. Carbon dioxide is not present in the flues gas. The presence of carbon monoxide is characteristic of an incomplete combustion; its presence should be resulted from the

action of micro reactor walls where partial micro extinctions may occur. However, its presence is reduced and tends to disappear at the reactor outlet. The study of thermal NO was privileged because of the temperatures existing in the micro reactor are too high to favour the presence of fuel NO₂ and prompt NO. The amounts of thermal NO approach a concentration of 0.8 ppm in the three simulated cases. This value is much lower than the concentration produced by their macroscopic counterparts (1000-4000 ppm) and should potentially be less dangerous. The acceptable NO concentration is 1 ppm in a breathable air. Since the thermal NO is favoured in lean conditions, the next challenge for the designers is to found a compromise between operating the MPG in these conditions and minimising the NO Production.

Acknowledgments

This work was partially supported by University of Quebec at Trois-Rivières by providing a Ph.D scholarship to O.T. Soso Mayi.

Nomenclature

R_j	Reaction rate of j species	(mol/m ³ /s)
k^f	Reaction rate constant	(1/s)
A	Pre-exponential factor	(consistent unit)
E_a	Activation energy	(J/mol)
R_g	Universal gas constant	(J/mol/K)
T	Temperature	(K)
C	Molar concentration	(mol/m ³)
a, b	concentration exponent	
k	Thermal conductivity	(W/mK)
C_p	Specific heat	(J/kgK)
M_n	Molar mass	(kg/mol)
p	Pressure	(Pa)
H_{sr}	Enthalpy of formation	(J/mol)
D_{jk}	Multi component Maxwell-Stefan diffusivity	(m ² /s)
w_i	Mass fraction	

Greek letters

ρ	Density	(kg/m ³)
μ	Dynamic viscosity	(Pa.s)
ϕ	Equivalence ratio	
τ	Nominal residence time	(s)

Subscripts

j	Specie
---	--------

List of figures

Fig. 1.	(a) Schematic of computational domain along with a description of some of the boundary conditions used in the model and (b) Mesh used in these simulations. More nodes are placed around the reaction zone.
Fig. 2.	Results of flame simulation giving temperature distribution within the microreactor with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$
Fig. 3.	(a) Temperature profile along with the axial displacement of microreactor, (b) reaction rate profile along with the axial displacement of microreactor.
Fig. 4.	Production and disappearance profile of major chemical species along with the axial displacement of microreactor with different equivalent ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$.
Fig. 5.	Carbon dioxide concentration (CO ₂) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$.
Fig. 6.	Carbon monoxide concentration (CO) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$
Fig. 7.	Azote monoxide concentration (NO) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$,

Fig. 8. (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$
Emission index (EINO) profile function of micro reactor temperatures
with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

References.

- [1] D. C. Walther and J. Ahn, "Advances and challenges in the development of power-generation systems at small scales," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 37, pp. 583-610, 2011.
- [2] C. H. Marton, G. S. Haldeman, and K. F. Jensen, "Portable Thermoelectric Power Generator Based on a Microfabricated Silicon Combustor with Low Resistance to Flow," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, vol. 50, pp. 8468-8475, 2011.
- [3] A. L. Cohen, P. D. Ronney, U. Frodis, L. Sitzki, E. H. Meiburg, and S. Wussow, "Microcombustor and combustion-based thermoelectric microgenerator," ed: Google Patents, 2005.
- [4] P. Aghalayam, P. Bui, and D. Vlachos, "THE ROLE OF FLAME-WALL THERMAL INTERACTIONS IN FLAME STABILITY AND POLLUTANT EMISSIONS," *Advances in Chemical Propulsion: Science to Technology*, p. 435, 2010.
- [5] D. C. Walther and J. Ahn, "Advances and challenges in the development of power-generation systems at small scales," *Progress in Energy and Combustion Science*, 2011.
- [6] K. R. Smith, "Fuel combustion, air pollution exposure, and health: the situation in developing countries," *Annual Review of Energy and the Environment*, vol. 18, pp. 529-566, 1993.
- [7] S. Hill and L. Douglas Smoot, "Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 26, pp. 417-458, 2000.
- [8] A. C. Fernandez-Pello, "Micropower generation using combustion: Issues and approaches," *Proceedings of the Combustion Institute*, vol. 29, pp. 883-899, 2002.
- [9] J. Hedley, M. Pourkashanian, A. Williams, and L. Yap, "NO_x Formation in Large-Scale Oxy-Fuel Flames," *Combustion Science and Technology*, vol. 108, pp. 311-322, 1995.
- [10] P. Schmitt, T. Poinsot, B. Schuermans, and K. Geigle, "Large-eddy simulation and experimental study of heat transfer, nitric oxide emissions and combustion instability in a swirled turbulent high-pressure burner," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 570, pp. 17-46, 2007.
- [11] P. A. Glaude, R. Fournet, R. Bounaceur, and M. Molière, "Adiabatic flame temperature from biofuels and fossil fuels and derived effect on NO_x emissions," *Fuel Processing Technology*, vol. 91, pp. 229-235, 2010.

- [12] H. Tsuji, A. K. Gupta, T. Hasegawa, M. Katsuki, K. Kishimoto, and M. Morita, *High temperature air combustion: from energy conservation to pollution reduction*: CRC press, 2010.
- [13] C. D. Hollowell, "Combustion-generated indoor air pollution," 2011.
- [14] N. I. Kim, S. Kato, T. Kataoka, T. Yokomori, S. Maruyama, T. Fujimori, *et al.*, "Flame stabilization and emission of small Swiss-roll combustors as heaters," *Combustion and Flame*, vol. 141, pp. 229-240, 2005.
- [15] M. Efinger, J. Mauzey, and V. McDonell, "Characterization and reduction of pollutant emissions from a landfill and digester gas fired microturbine generator," 2005, pp. 381-387.
- [16] A. V. Boicea, G. Chicco, and P. Mancarella, "Optimal operation of a microturbine cluster with partial-load efficiency and emission characterization," 2009.
- [17] M. Nascimento, E. Lora, and M. Rendon, "Experimental Evaluation and Comparison of the Performance and Emissions of a Regenerative Gas Microturbine Using Biodiesel From Various Sources as Fuel," 2007.
- [18] C. Multiphysics, "4.2 a user guide," *Stockholm, Sweden*, 2008.
- [19] F. A. Williams, *Combustion Theory: the fundamental theory of chemical reacting flow systems*: Addison-Wesley, 1965.
- [20] D. G. Norton and D. G. Vlachos, "Combustion characteristics and flame stability at the microscale: a CFD study of premixed methane/air mixtures," *Chemical Engineering Science*, vol. 58, pp. 4871-4882, 2003.
- [21] D. G. Norton and D. G. Vlachos, "A CFD study of propane/air microflame stability," *Combustion and Flame*, vol. 138, pp. 97-107, 2004.
- [22] W. Jones and R. Lindstedt, "Global reaction schemes for hydrocarbon combustion," *Combustion and Flame*, vol. 73, pp. 233-249, 1988.
- [23] J. Andersen, C. L. Rasmussen, T. Giselsson, and P. Glarborg, "Global combustion mechanisms for use in CFD modeling under oxy-fuel conditions," *Energy & Fuels*, vol. 23, pp. 1379-1389, 2009.
- [24] S. Naha and S. K. Aggarwal, "Fuel effects on NO_x emissions in partially premixed flames," *Combustion and flame*, vol. 139, pp. 90-105, 2004.
- [25] C. Lee, C. Oh, and J. Kim, "Numerical and experimental investigations of the NO_x emission characteristics of CH₄-air coflow jet flames," *Fuel*, vol. 83, pp. 2323-2334, 2004.
- [26] S. Hill and L. Douglas Smoot, "Modeling of nitrogen oxides formation and destruction in combustion systems," *Progress in energy and combustion science*, vol. 26, pp. 417-458, 2000.
- [27] E.-S. Cho and S. H. Chung, "Numerical evaluation of NO_x mechanisms in methane-air counterflow premixed flames," *Journal of mechanical science and technology*, vol. 23, pp. 659-666, 2009.
- [28] G. P. Smith *et al.*, "Gri-Mech 3.0.," http://www.me.berkeley.edu/qri_mech/ 2000.
- [29] M. Nishioka, S. Nakagawa, Y. Ishikawa, and T. Takeno, "NO emission characteristics of methane-air double flame," *Combustion and Flame*, vol. 98, pp. 127-138, 1994.
- [30] W. Yang and W. Blasiak, "Mathematical modelling of NO emissions from high-temperature air combustion with nitrous oxide mechanism," *Fuel Processing Technology*, vol. 86, pp. 943-957, 2005.
- [31] N. S. Kaisare and D. G. Vlachos, "Optimal reactor dimensions for homogeneous combustion in small channels," *Catalysis Today*, vol. 120, pp. 96-106, 2007.

- [32] A. Gutkowski, "Numerical Analysis of Effect of Ignition Methods on Flame Behavior During Passing Through a Sudden Contraction Near the Quenching Conditions," *Applied Thermal Engineering*, 2013.
- [33] J. Li, S. K. Chou, W. M. Yang, and Z. W. Li, "A numerical study on premixed micro-combustion of CH₄-air mixture: Effects of combustor size, geometry and boundary conditions on flame temperature," *Chemical Engineering Journal*, vol. 150, pp. 213-222, 2009.
- [34] N. Kaisare and D. Vlachos, "Optimal reactor dimensions for homogeneous combustion in small channels," *Catalysis Today*, vol. 120, pp. 96-106, 2007.
- [35] O. Mayi, S. Kenfack, M. Ndamé, M. Obounou Akong, and J. T. Agbébavi, "Numerical Simulation of Premixed Methane/Air Micro Flame: Effects of Simplified One Step Chemical Kinetic Mechanisms on the Flame Stability," *Applied Thermal Engineering*, 2014.
- [36] J. Li, S. Chou, W. Yang, and Z. Li, "A numerical study on premixed micro-combustion of CH₄-air mixture: Effects of combustor size, geometry and boundary conditions on flame temperature," *Chemical engineering journal*, vol. 150, pp. 213-222, 2009.
- [37] T. T. Leach, C. P. Cadou, and G. S. Jackson, "Effect of structural conduction and heat loss on combustion in micro-channels," *Combustion Theory and Modelling*, vol. 10, pp. 85-103, 2006.
- [38] C. Law and C. Sung, "Structure, aerodynamics, and geometry of premixed flamelets," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 26, pp. 459-505, 2000.
- [39] J. A. Hoskins, "Health effects due to indoor air pollution," *Indoor and Built Environment*, vol. 12, pp. 427-433, 2003.
- [40] D. G. Vlachos, L. D. Schmidt, and R. Aris, "Products in methane combustion near surfaces," *AIChE journal*, vol. 40, pp. 1018-1025, 1994.
- [41] T. Takeno and M. Nishioka, "Species conservation and emission indices for flames described by similarity solutions," *Combustion and flame*, vol. 92, pp. 465-468, 1993.

LIST OF CAPTION

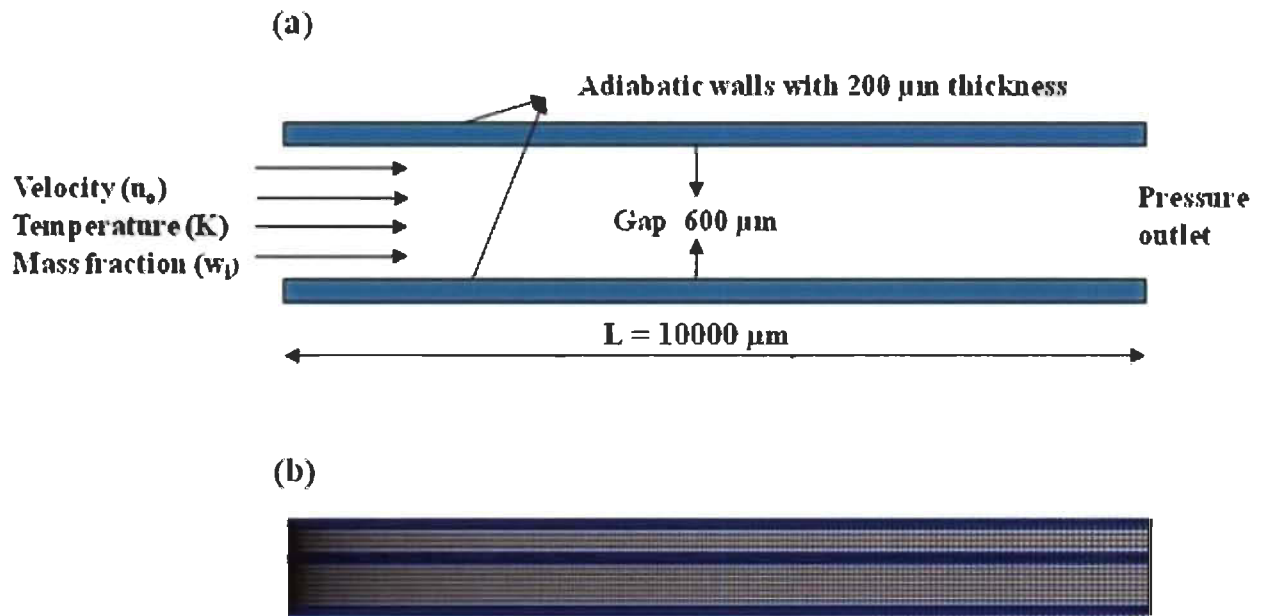


Figure 1: (a) Schematic of computational domain along with a description of some of the boundary conditions used in the model and (b) Mesh used in these simulations. More nodes are placed around the reaction zone.

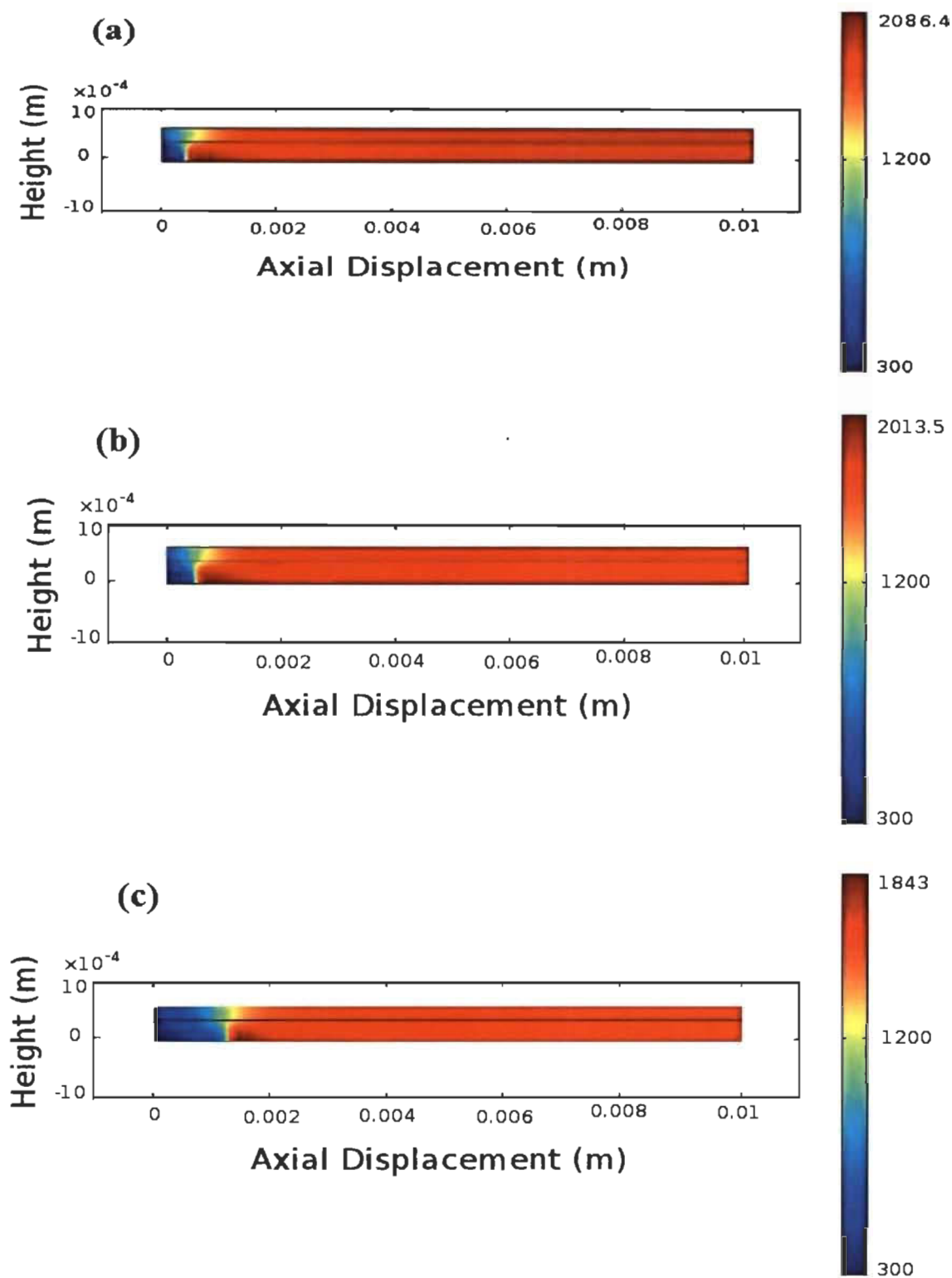


Figure 2: Results of flame simulation giving temperature distribution within the microreactor with different equivalent ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

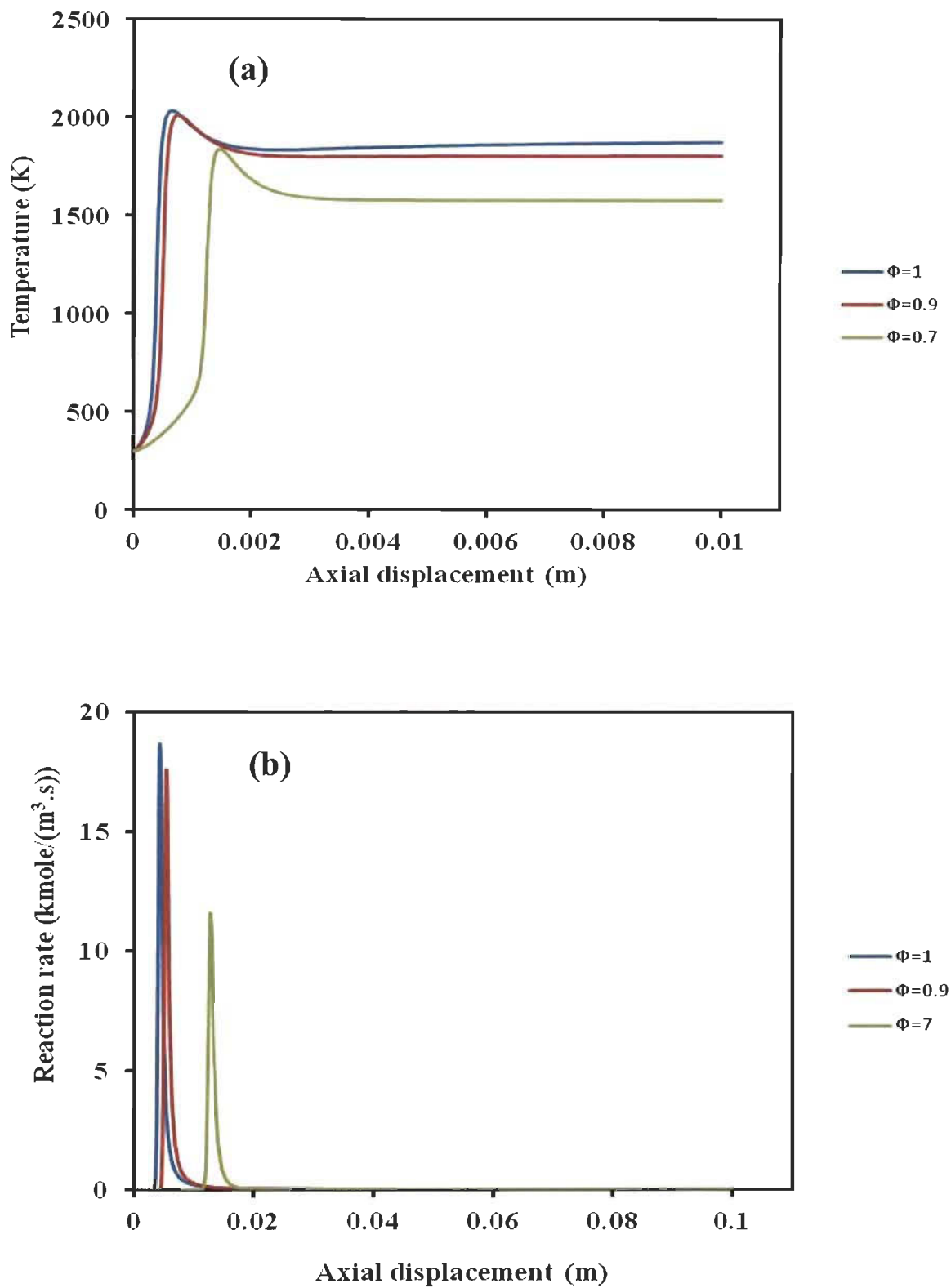
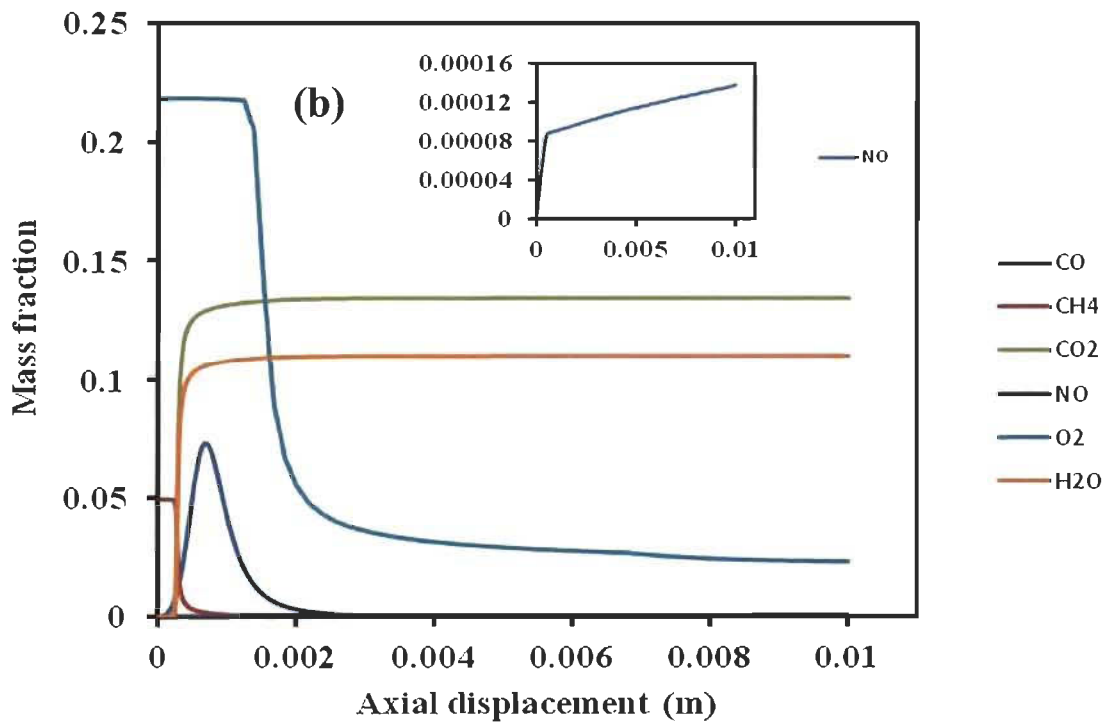
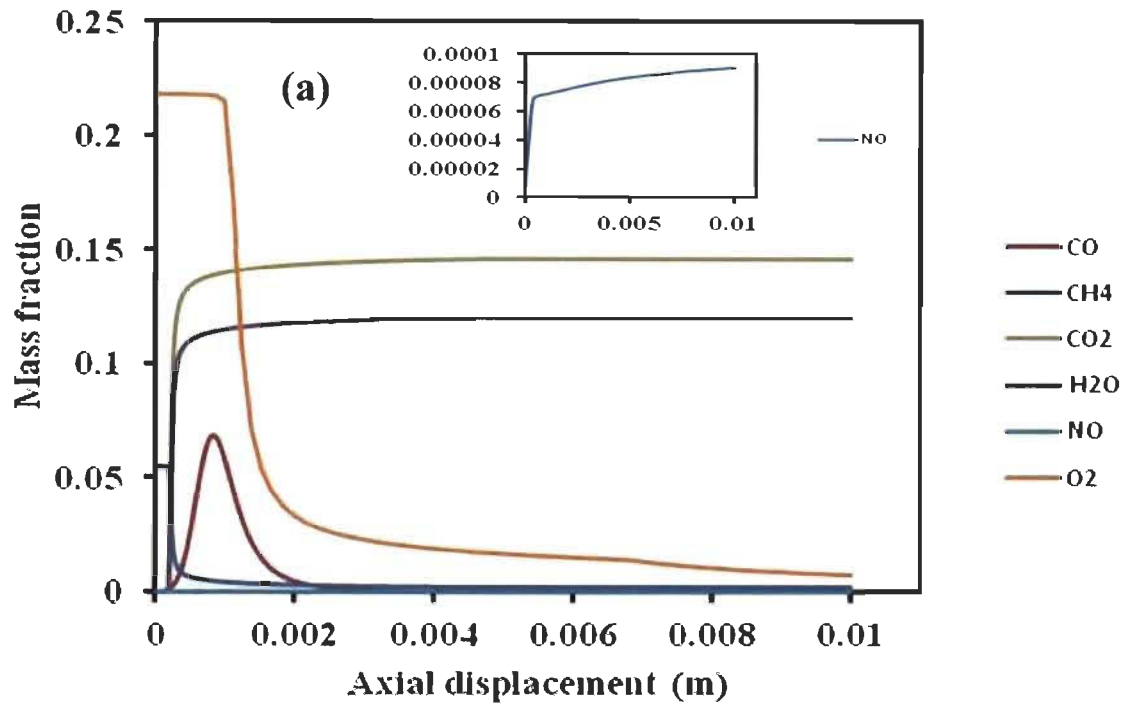


Figure 3: (a) Temperature profile along with the axial displacement of microreactor, (b) reaction rate profile along with the axial displacement of microreactor.



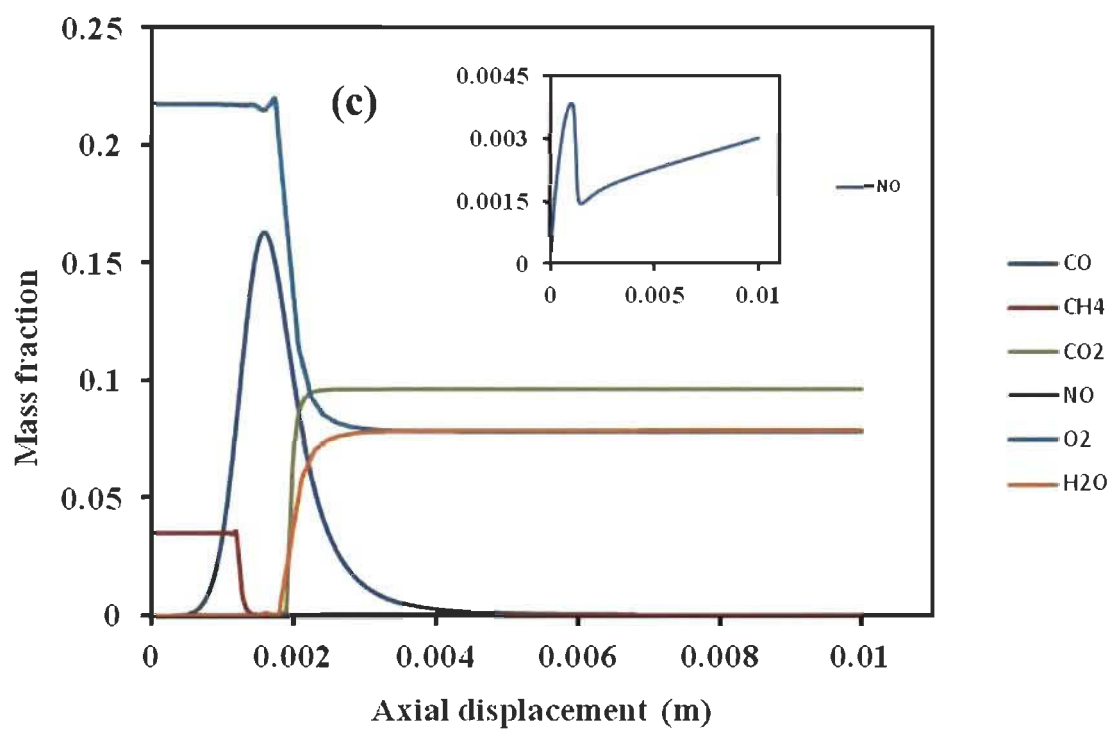


Figure 4: Production and disappearance profile of major chemical species along with the axial displacement of microreactor with difference equivalence ratio; **(a)** $\phi=1$, **(b)** $\phi=0.9$, **(c)** $\phi=0.7$

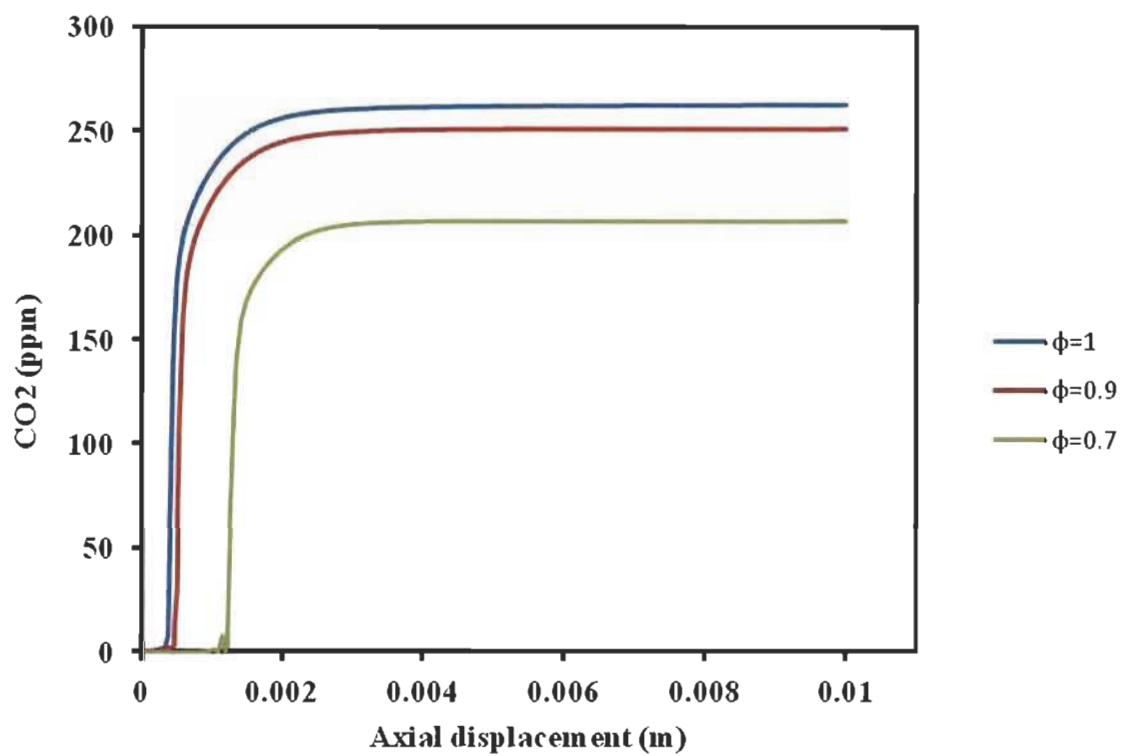


Figure 5: Carbon dioxide concentration (CO₂) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

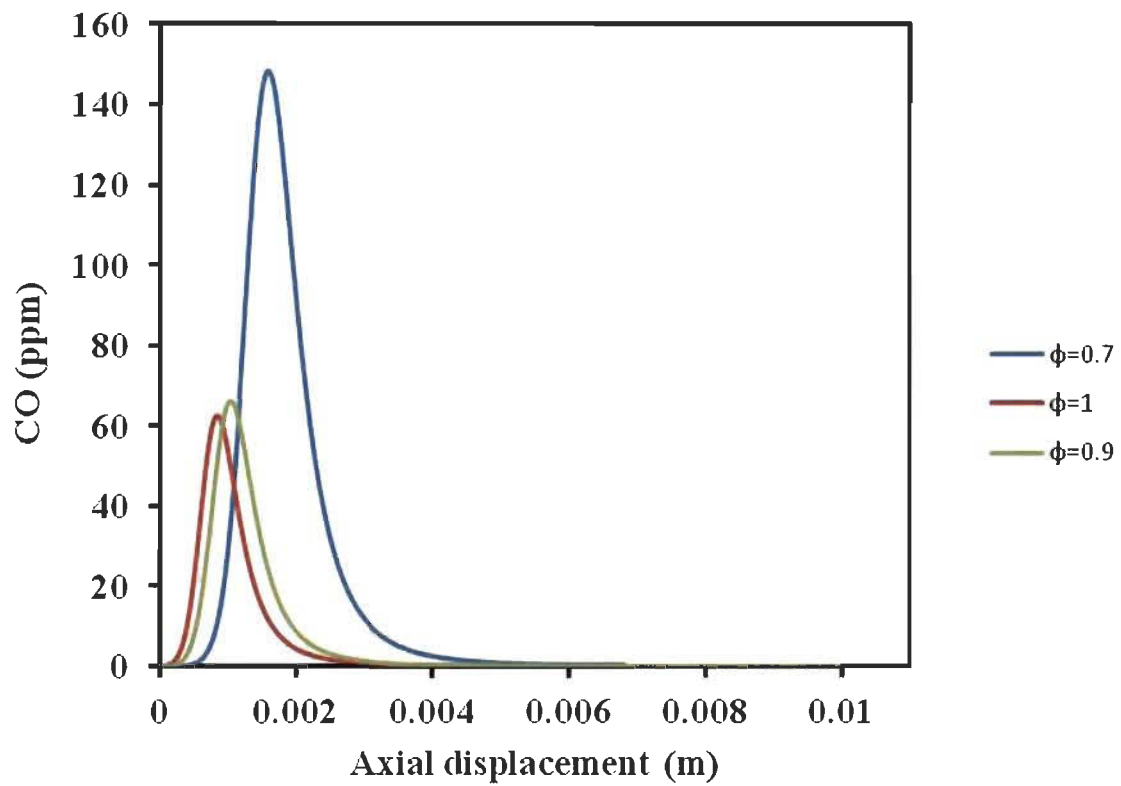


Figure 6: Carbon monoxide concentration (CO) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; **(a)** $\phi=1$, **(b)** $\phi=0.9$, **(c)** $\phi=0.7$

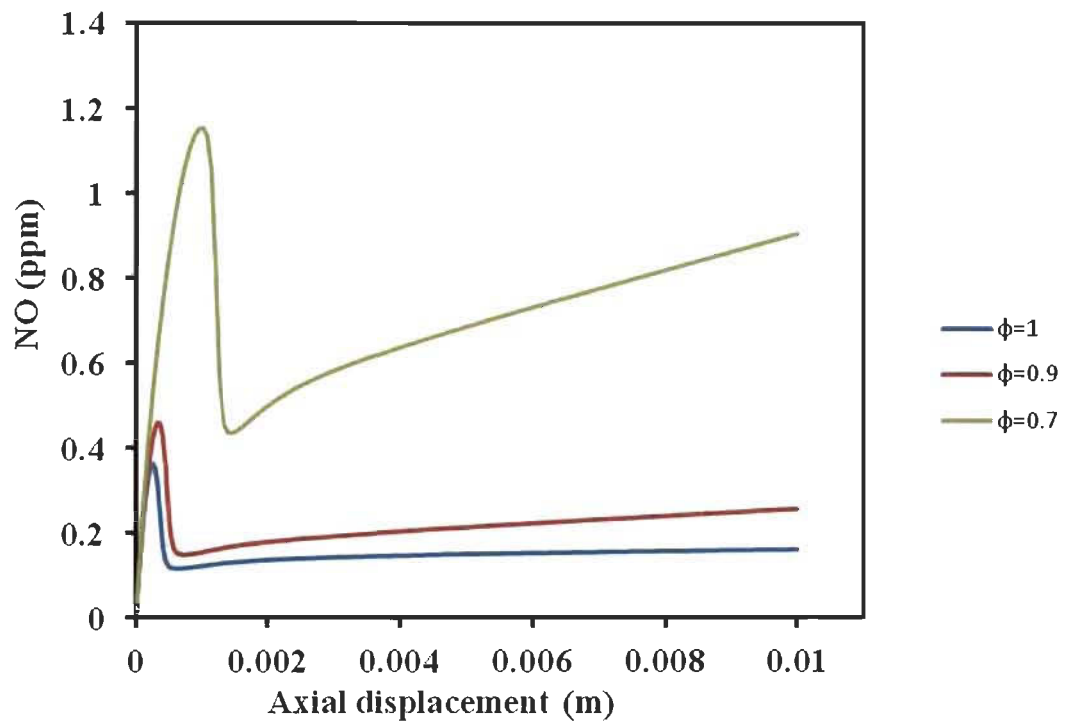


Figure 7: Nitrogen monoxide concentration (NO) profile along with the axial displacement of microreactor with different equivalence ratio; **(a)** $\phi=1$, **(b)** $\phi=0.9$, **(c)** $\phi=0.7$

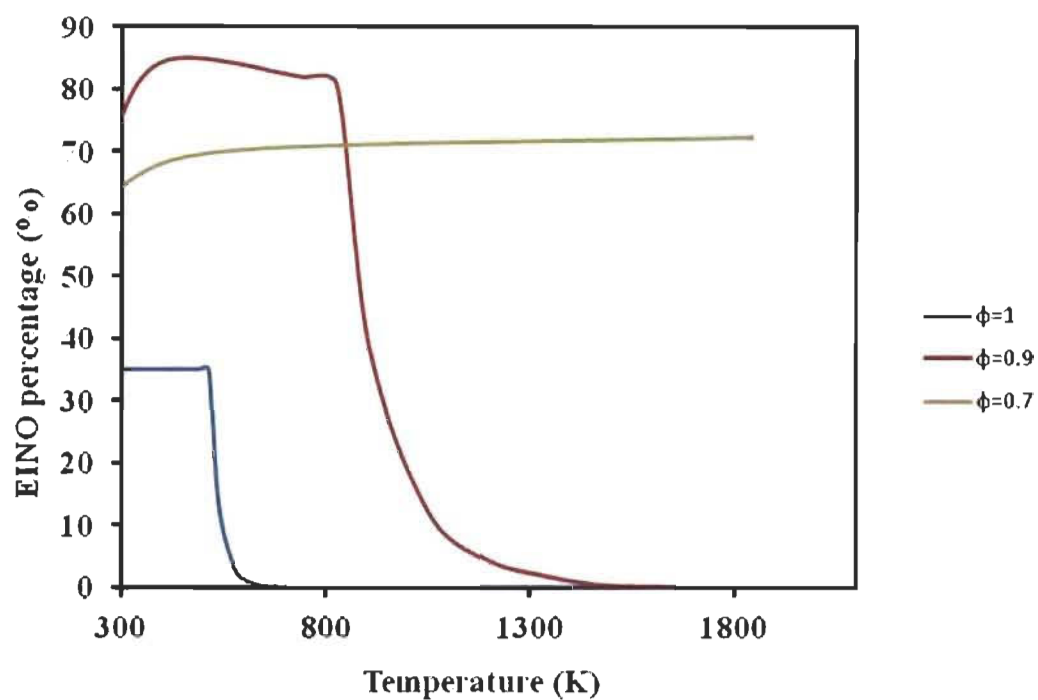


Figure 8: Emission index (EINO) profile function of micro reactor temperatures with different equivalence ratio; (a) $\phi=1$, (b) $\phi=0.9$, (c) $\phi=0.7$

LIST OF TABLES

Table 1: Jones and Lindstedt global faur step mechanism with the kinetic Rate Data (units in cm, s, cal, mol)[28]

No	Reactions	A	n	E _a	Reaction orders
JL1	$\text{CH}_4 + 0.5\text{O}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{H}_2$	$7.82 \cdot 10^{13}$	0	$30 \cdot 10^3$	$[\text{CH}_4]^{0.5} \cdot [\text{O}_2]^{1.25}$
JL2	$\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + 3\text{H}_2$	$0.30 \cdot 10^{12}$	0	$30 \cdot 10^3$	$[\text{CH}_4] \cdot [\text{H}_2\text{O}]$
JL3b	$\text{H}_2 + 0.5\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$	$1.21 \cdot 10^{18}$	-1	$40 \cdot 10^3$	$[\text{H}_2]^{0.25} \cdot [\text{O}_2]^{1.5}$
JL4	$\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$	$2.75 \cdot 10^{12}$	0	$20 \cdot 10^3$	$[\text{CO}] \cdot [\text{H}_2\text{O}]$

Table 2: Reaction rate parameters for extended Zeldovich mechanism [31]

Reaction expression	A (cm ³ gmol ⁻¹ s ⁻¹ K ⁻¹)	n	E _a
$\text{O} + \text{N}_2 \leftrightarrow \text{NO} + \text{N}$	$1.36 \cdot 10^{14}$	0	315,900
$\text{N} + \text{O}_2 \leftrightarrow \text{NO} + \text{O}$	$6.40 \cdot 10^9$	1	26,300
$\text{N} + \text{OH} \leftrightarrow \text{NO} + \text{H}$	$3.28 \cdot 10^{13}$	0	No temperature dependence

Annexe C – Analyse Technico économique de la mise sur pied d'un MPG

Le MPG dont l'étude technico économique est faite dans cette partie est un dispositif de production d'énergie à travers la combustion d'une flamme de pré mélange dans un réacteur rectangulaire à partir d'un procédé photovoltaïque de récupération d'énergie afin de délivrer de l'énergie électrique.

A 1. Schéma de principe

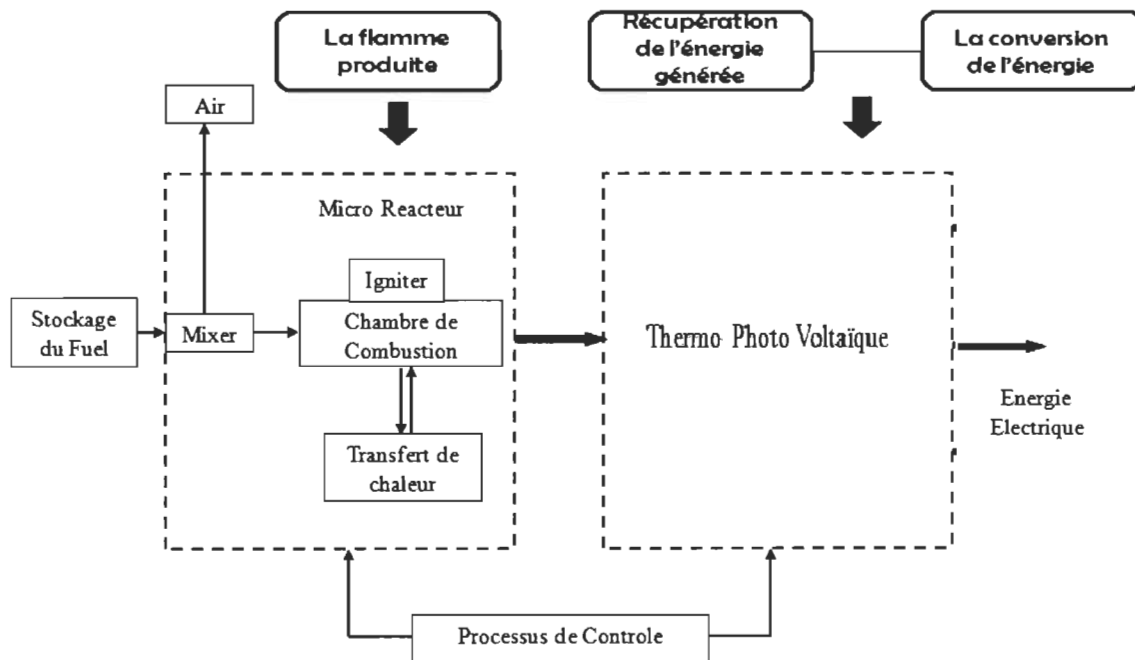


Figure Ac1: Schéma de principe d'un dispositif de micro production d'énergie

A.2 Coût estimatif d'un prototype de MPG

Ce dispositif est constitué de plusieurs cellules, permettant la production d'une flamme, la récupération d'énergie et sa conversion par des micros plaques photovoltaïques. Les éléments constitutifs d'un tel dispositif sont :

Tableau Ac1 : Coût du dispositif MPG par procédé photovoltaïque

Éléments constitutifs	Quantité	Prix(en dollar)
Tank se stockage de fuel/air	1	50
Mélangeur	1	25
Alumina	24.000.000 μm^2	350
Système d'automatisation	1	125
Plaques solaires	24.000.000 μm^2	185
Igniter	1	18
Fil électrique	250 μm	5
Montage	10 heures de travail	500
Total		1258

A.3 Méthode de transfert de technologie

La construction d'un MPG demande l'utilisation de technologies de pointe pour la fabrication des dispositifs dont les dimensions ne sont pas visibles à l'œil nu. Outre les matériaux proposés ci-dessus, il faudrait un ensemble d'équipements permettant sa fabrication et son utilisation. Nous proposons au préalable plusieurs stages dans des

laboratoires où existent déjà de tels types de dispositifs, par exemple le laboratoire de l'Université nationale de Singapour du prof W.M. Yang. En outre l'Afrique peut bénéficier d'une telle technologie qui pourrait s'appliquer dans plusieurs secteurs d'activités à travers un processus d'échange une fois que l'Université du Québec à Trois-Rivières aura acquis la maîtrise de ce type de fabrication.